



# Développement d'une lentille de Laue pour l'astrophysique nucléaire

Julien Rousselle

## ► To cite this version:

Julien Rousselle. Développement d'une lentille de Laue pour l'astrophysique nucléaire. Planète et Univers [physics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2011. Français. NNT: . tel-00579538

**HAL Id: tel-00579538**

**<https://theses.hal.science/tel-00579538>**

Submitted on 24 Mar 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



# THESE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

**Délivré par** *l'Université Toulouse III - Paul Sabatier*

**Discipline ou spécialité :** *Astrophysique - Instrumentation*

---

**Présentée et soutenue par** *Julien Rousselle*

**Le** *15/03/2011*

**Titre :** *Développement d'une lentille de Laue pour l'astrophysique nucléaire*

---

### JURY

*Pierre JEAN - Président*

*Filippo FRONTERA - Rapporteur*

*Jean-Louis HODEAU - Rapporteur*

*Pierre BASTIE - Examineur*

*Emmanuelle RIVIERE - Examineur*

*Peter von BALLMOOS - Directeur de thèse*

*Gilles BONNETTO - Directeur de thèse*

---

**Ecole doctorale :** *Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)*

**Unité de recherche :** *Institut de Recherche en Astrophysique et Planétologie (IRAP)*

**Directeur(s) de Thèse :** *Peter von BALLMOOS et Gilles Bonnetto*

**Rapporteurs :** *Filippo FRONTERA et Jean-Louis HODEAU*



# Remerciements

Le manuscrit que vous avez ouvert est le fruit de plus de trois ans de travail. Mais ce travail n'aurait jamais vu le jour sans la ténacité de Peter pour trouver les financements nécessaires. Merci donc à toi Peter de m'avoir permis de faire cette thèse et pour m'avoir accompagné et guidé depuis mon stage de Master 1ère année jusqu'à ma soutenance de thèse, cinq ans plus tard.

Cette thèse m'a permis d'avoir accès à des complexes scientifiques et des instruments exceptionnels à Grenoble, mais j'aurais été incapable de les utiliser tout seul. Merci donc à Gilles Roudil pour m'avoir accompagné et aidé lors de toutes les mesures à l'ILL et à l'ESRF et pour avoir brillamment assuré la gestion du projet au sein du laboratoire. Merci à Michael Jentschel pour avoir été bien plus que notre "local contact" à l'ILL. Il a toujours été là pour soutenir le projet et nous donner accès aux instruments de mesure. Il nous a considérablement aidé avec son enthousiasme et ses idées brillantes.

L'ILL à Grenoble abrite également le groupe monochromateur, mené par Pierre Courtois, que je souhaite remercier pour tout le travail qu'ils ont accompli lors de la fabrication des cristaux de cuivre. Merci également à Pierre Bastie pour son expertise en cristallographie, sa disponibilité et son aide à l'orientation des cristaux. Son enthousiasme et sa bonne humeur permanente auront été un vrai bol d'oxygène durant les interminables sessions de mesure à l'ILL.

Malgré toutes ces escapades à Grenoble, la majeure partie de ma thèse s'est fait à Toulouse dans le laboratoire qui s'appelait CESR lorsque je suis arrivé et IRAP quand j'en suis parti. Ce laboratoire possède une ambiance particulière et unique que je regretterai, avec des doctorants toujours prêts à s'entraider et Jeff, toujours prêts à nous filer un coup de main quand on a un soucis logistique (ce qui arrive souvent).

La thèse est loin d'être un long fleuve tranquille, et je remercie chaleureusement tous les copains pour m'avoir soutenu, rassuré ou botté le cul quand j'en avais besoin. Merci donc (par ordre alphabétique) à Aline, Damien C, Damien P, Jeff, Max, Martin, Nathalie, Nico, Robert et bien sur Helene, ma femme, qui a dû supporter mon stress et mes longues absences.

Avant de terminer, je souhaiterais également remercier Nicolas Barrière, qui m'a appris tout ce que je sais sur la lentille de Laue et la simulation numérique, lors de mes stages de Master.

Enfin, merci à vous qui avez ouvert cette thèse et lu ces quelques mots. J'espère que vous trouverez le courage d'aller plus loin, et que ce manuscrit vous apportera les réponses que vous cherchez.



L'astrophysique  $\gamma$  nucléaire, situé à l'extrémité du spectre électromagnétique, est un domaine très riche scientifiquement. Il contient l'information capable, entre autres, de révéler la nucléosynthèse des éléments lourds au sein des supernovae ou l'origine de l'antimatière dans la galaxie.

Ce domaine est longtemps resté inaccessible jusqu'aux années 60 à cause de l'absorption de l'atmosphère dans cette gamme d'énergies. Les observations sont ensuite restées handicapées par le rayonnement cosmique, qui noie le faible signal des sources sous un intense bruit de fond. De plus, l'énergie des photons  $\gamma$  rend inefficaces les techniques classiques de focalisation, rendant plus complexe le développement des instruments d'observation. Malgré toutes ces difficultés, des observatoires comme CGRO et INTEGRAL ont réussi à révolutionner l'astrophysique nucléaire, grâce à l'utilisation de télescope Compton et de masques codés. Toutefois, ces techniques semblent aujourd'hui atteindre leurs limites, où des instruments plus grands ne sont pas forcément plus performants.

Depuis une quinzaine d'années, une technique innovante est développée au CERN, capable d'améliorer la sensibilité de détection par un facteur 10-100, par rapport aux instruments existants. Cette technique nommée lentille de Laue, et dont le principe a été démontré par la mission ballon CLAIRE, est capable de concentrer les rayonnements  $\gamma$  nucléaires à l'aide de la diffraction de Bragg, au sein de cristaux répartis en anneaux concentriques.

Mon travail a consisté à poursuivre le développement de la lentille de Laue en améliorant et en validant les briques technologiques nécessaire pour qu'elle soit utilisée sur un observatoire spatial.

La première partie de mon travail de thèse a consisté à améliorer les performances des cristaux diffractant, qui constituent le coeur de la lentille. Ces améliorations ont nécessité de modéliser et comparer les capacités de diffraction d'un grand nombre de cristaux, puis de confirmer les performances des meilleurs candidats au cours de session de mesures sur des faisceaux X- $\gamma$ . Ces mesures ont été effectuées au synchrotron européen de Grenoble (ESRF) et au réacteur nucléaire scientifique de l'ILL. Elles ont permis, entre autres, de mettre en avant les excellentes performances des cristaux d'or et d'argent.

La seconde partie de mon travail a consisté à concevoir, réaliser et tester un prototype de segment de lentille spatialisable, en collaboration avec le CNES et Thales Alenia Space. Ce prototype a permis de valider les procédés de fixation et d'orientation des cristaux et de s'assurer qu'il résiste aux test de vibrations et de cyclage thermique.



Gamma-ray astronomy addresses a wide range of fundamental astrophysical questions such as the life cycles of matter and the behaviour of matter under extreme conditions. Whereas Gamma-rays present an extraordinary scientific potential for the study of the most powerful sources and the most violent events in the Universe, their observation has been held back by an intricate compound of experimental difficulties. Due to the atmospheric absorption of gamma-rays, instruments have to be carried above the atmosphere where they are exposed to Cosmic Rays. The bombardment of the instrument and spacecraft by Cosmic Ray particles generates high background rate in the detectors, limiting severely the sensitivity of gamma-ray telescopes.

Despite these difficulties, Nuclear Astrophysics has made considerable progress in the last twenty years thanks to the instruments on the CGRO and INTEGRAL Observatories, i.e. instruments that are based on inelastic interaction processes, using either geometrical optics (e.g. coded masks) or quantum optics (e.g. Compton telescopes). Today, physical limits to the size of these instruments seem to be attained : pushing the performance further leads to several apparently unsolvable problems, ultimately owing to the belief that it is “impossible to reflect or refract gamma-rays”.

In this work, a new type of gamma-ray telescope is presented. It features a crystal diffraction lens that concentrates photons from a large photon collecting area onto a small detector. In such a Laue lens, a large number of crystals are disposed on concentric rings ; each crystal can be considered as a little mirror which deviates gamma-rays through Bragg diffraction from the incident beam onto a common focal spot. The principle of the Laue lens for astrophysics was demonstrated with the balloon mission CLAIRE.

The objective of this work was to develop the Laue Lens concept into a sensitive, space qualified optics for a future satellite mission. My contribution consisted of two main facets : a) finding appropriate crystal materials and improving the performance of the diffracting crystals, and b) develop a prototype segment for a space qualified lens.

Exploring new diffracting media and improving the performance of individual crystals implied the development of numerical simulations of the diffraction process for various types of mosaic and CDP (Curved Diffraction Plane) crystals. These simulations were used to select suitable crystals to be grown and to be tested. Two different X-  $\gamma$  ray facilities were used to probe the crystalline quality of our candidate materials : The European Synchrotron Radiation Facility (ESRF, France) and the high neutron flux reactor at ILL (France). During 10 beam-runs (and a total of 3 months of measurement), a large number of samples were tested, including Ag, Ir, Pt, Au, Pb, Rh, AsGa, SiGe, and Cu crystals. Outstanding performances were established for gold and silver crystals ( $>500$  keV), Cu and Ge (300-500 keV) crystals and SiGe CDP ( $<300$  keV) crystal.

The second facet of this work consisted of designing, manufacturing and characterization a prototype lens segment. This R&D program was completed in collaboration with the CNES and Thales Alenia Space. For a representative sample of metal and semiconductor crystals that were mounted on the prototype, we have been able to maintain the required precision through the various steps of alignment, moun-



---

ting and space qualification testing i.e. characterizing the crystal plane orientation, machining the lens support, cementing the crystals on the support, vibration tests, and thermal cycling.

In conclusion, we have shown that a sensitive Laue lens is achievable with the presently available diffraction crystals, and have demonstrated and qualified a prototype lens segment.

# Table des matières

|  |           |
|--|-----------|
| Remerciements . . . . .  | 3         |
| <b>1 Introduction scientifique et technique</b>                            | <b>13</b> |
| 1.1 L'astrophysique nucléaire . . . . .                                    | 14        |
| 1.1.1 Le rayonnement $\gamma$ au sein du spectre électromagnétique . . . . | 14        |
| 1.1.2 Brève histoire de l'astronomie gamma . . . . .                       | 14        |
| 1.2 Principaux thèmes scientifiques dans le MeV. . . . .                   | 16        |
| 1.2.1 Physique des éruptions solaires . . . . .                            | 16        |
| 1.2.2 Physique de l'explosion de supernovae de type Ia . . . . .           | 17        |
| 1.2.3 Antimatière dans la galaxie . . . . .                                | 18        |
| 1.2.4 Rayonnement cosmique de basse énergie . . . . .                      | 19        |
| 1.2.5 Etoiles à neutron isolées . . . . .                                  | 19        |
| 1.2.6 Sursauts gamma . . . . .   | 20        |
| 1.2.7 Radioactivité galactique . . . . .                                   | 20        |
| 1.2.8 Novae . . . . .  | 21        |
| 1.2.9 Noyaux actifs de galaxies . . . . .                                  | 21        |
| 1.3 Principes d'émission des raies gamma . . . . .                         | 22        |
| 1.3.1 Désexcitation nucléaire . . . . .                                    | 22        |
| 1.3.2 Désintégration de radionucléides . . . . .                           | 22        |
| 1.3.3 Capture neutronique . . . . .  | 23        |
| 1.3.4 Raie d'annihilation $e^+ - e^-$ . . . . .                            | 23        |
| 1.3.5 Raie cyclotron . . . . .   | 24        |
| 1.3.6 Emission de continuum . . . . .                                      | 24        |
| 1.4 Les instruments d'observation existants . . . . .                      | 25        |
| 1.4.1 Principes de détection des rayonnements $\gamma$ . . . . .           | 25        |
| 1.4.2 Télescope à modulation d'ouverture . . . . .                         | 27        |
| 1.4.3 Télescope Compton . . . . .  | 29        |
| 1.4.4 Limitations des télescopes existants . . . . .                       | 30        |
| 1.5 Principe de fonctionnement d'une lentille de Laue . . . . .            | 31        |
| 1.5.1 Géométrie de la lentille . . . . .                                   | 32        |
| 1.5.2 Bref historique du développement de la lentille de Laue . . . .      | 33        |
| <b>2 Diffraction dans les cristaux</b>                                     | <b>35</b> |
| 2.1 Notions utiles de cristallographie . . . . .                           | 36        |
| 2.1.1 Définition d'un cristal . . . . .                                    | 36        |
| 2.1.2 Réseau cristallin . . . . .  | 36        |
| 2.1.3 Plans réticulaires . . . . .   | 37        |
| 2.2 Diffraction dans un cristal idéal . . . . .                            | 38        |
| 2.2.1 Partie géométrique de la diffraction . . . . .                       | 38        |
| 2.2.2 Diffusion par un électron et par un atome . . . . .                  | 42        |
| 2.2.3 Diffraction par une maille cristalline . . . . .                     | 44        |
| 2.2.4 Théorie cinématique . . . . .  | 47        |
| 2.2.5 Théorie dynamique . . . . .  | 51        |
| 2.3 Diffraction dans un cristal mosaïque . . . . .                         | 54        |
| 2.3.1 Distribution angulaire des cristallites . . . . .                    | 55        |

## TABLE DES MATIÈRES

---

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| 2.3.2    | Réflectivité d'un cristal mosaïque . . . . .  | 55        |
| 2.3.3    | Courbe de diffraction . . . . .   | 56        |
| 2.4      | Diffraction dans un cristal courbe . . . . .  | 57        |
| 2.4.1    | Techniques de courbure . . . . .  | 57        |
| 2.4.2    | Intensité diffractée par les cristaux courbes . . . . .                             | 58        |
| <b>3</b> | <b>Etude comparative des matériaux diffractant</b>                                  | <b>61</b> |
| 3.1      | Modèle de diffraction . . . . .   | 62        |
| 3.2      | Présélection des matériaux . . . . .  | 63        |
| 3.3      | Résultats de modélisation des matériaux mono-élément . . . . .                      | 65        |
| 3.3.1    | Réflectivité . . . . .  | 65        |
| 3.3.2    | Contraintes de Poids . . . . .  | 67        |
| 3.3.3    | Propriétés mécaniques . . . . .   | 69        |
| 3.3.4    | Bilan . . . . .   | 69        |
| 3.4      | Matériaux binaires . . . . .  | 71        |
| 3.4.1    | Réflectivités . . . . .   | 71        |
| 3.4.2    | Contrainte de poids et de tenue mécanique . . . . .                                 | 72        |
| 3.4.3    | Bilan . . . . .   | 73        |
| 3.5      | Cas des cristaux quasi-parfaits . . . . .   | 73        |
| 3.5.1    | Mosaïcité « artificielle » . . . . .  | 75        |
| 3.5.2    | Cristaux à plans courbes . . . . .  | 75        |
| 3.6      | Conclusion . . . . .  | 77        |
| <b>4</b> | <b>Croissance et mesure de performance des cristaux</b>                             | <b>79</b> |
| 4.1      | Spécifications recherchées . . . . .  | 80        |
| 4.1.1    | Section . . . . .   | 80        |
| 4.1.2    | Epaisseur . . . . .   | 80        |
| 4.1.3    | Mosaïcité . . . . .   | 82        |
| 4.2      | Production des cristaux . . . . .   | 83        |
| 4.2.1    | Croissance Bridgman . . . . .   | 83        |
| 4.2.2    | Croissance Czochralski . . . . .  | 83        |
| 4.2.3    | Découpe par életro-érosion . . . . .  | 84        |
| 4.3      | Instruments de mesure . . . . .   | 85        |
| 4.3.1    | Principe de mesure . . . . .  | 85        |
| 4.3.2    | ILL GAMS-5 . . . . .  | 87        |
| 4.3.3    | ESRF ID-15-A . . . . .  | 87        |
| 4.4      | Etude ESA de faisabilité des cristaux de cuivre mosaïques et SiGe courbes . . . . . | 90        |
| 4.5      | Cristaux de cuivre et SiGe pour le module prototype . . . . .                       | 102       |
| 4.6      | Cristaux d'or et d'argent . . . . .   | 105       |
| 4.7      | Cristal mosaïque de plomb . . . . .   | 117       |
| 4.8      | Cristal mosaïque d'arséniure de gallium . . . . .                                   | 117       |
| 4.9      | Cristal mosaïque de rhodium . . . . .   | 120       |
| 4.10     | Cristaux de platine et iridium . . . . .  | 120       |
| 4.11     | Courbure mécanique d'un cristal de germanium . . . . .                              | 121       |
| 4.12     | Conclusion . . . . .  | 123       |

|          |   |            |
|----------|---|------------|
| <b>5</b> | <b>Développement d'un prototype de lentille de Laue</b> | <b>125</b> |
| 5.1      | Objectifs du prototype . . . . .                        | 126        |
| 5.2      | Conception du support . . . . .                         | 126        |
| 5.3      | Sélection des cristaux . . . . .                        | 127        |
| 5.4      | Principe d'orientation des cristaux . . . . .           | 127        |
| 5.4.1    | Mesures des angles d'asymétrie des cristaux . . . . .   | 130        |
| 5.4.2    | Usinage des plots du module . . . . .                   | 133        |
| 5.4.3    | Collage des cristaux sur le module . . . . .            | 133        |
| 5.5      | Contrôle du module - Orientation et mosaïcité . . . . . | 136        |
| 5.5.1    | Principe de mesure . . . . .                            | 136        |
| 5.5.2    | Protocole expérimental . . . . .                        | 136        |
| 5.5.3    | Contrôle après collage . . . . .                        | 138        |
| 5.5.4    | Contrôle après vibration . . . . .                      | 139        |
| 5.5.5    | Contrôle après cyclage thermique . . . . .              | 141        |
| 5.6      | Conclusion . . . . .                                    | 142        |
| <b>6</b> | <b>Capacité en imagerie de la lentille de Laue</b>      | <b>145</b> |
|          | <b>Conclusions et perspectives</b>                      | <b>153</b> |



# Introduction scientifique et technique

Il est important de rappeler que le développement instrumental n'est pas une fin en soit, mais une manière d'apporter de nouveaux outils capables de répondre aux questionnements scientifiques. C'est pourquoi ce chapitre débute par un rapide historique de l'astrophysique  $\gamma$  et un tour d'horizon des objectifs scientifiques, auxquels la lentille de Laue pourrait apporter des réponses.

La deuxième partie de ce chapitre est dédiée aux instruments existants et permet d'exposer le contexte général dans lequel se place le développement de la lentille de Laue.

Enfin la dernière partie présente le principe de fonctionnement de la lentille de Laue, ainsi qu'un bref historique des développements précédents.

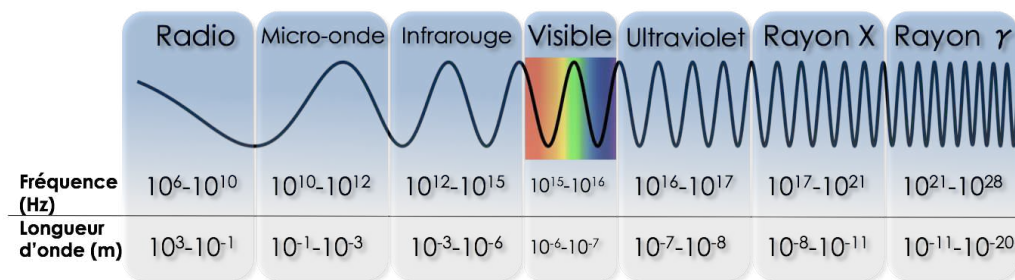


FIGURE 1.1 – Les différents domaines du spectre électromagnétique classés par longueur d’ondes et fréquences.

## 1.1 L’astrophysique nucléaire

### 1.1.1 Le rayonnement $\gamma$ au sein du spectre électromagnétique

Le rayonnement  $\gamma$  tient une place bien particulière au sein du spectre électromagnétique. On attribut sa d’couverte tardive à Paul Villard au début du XX<sup>e</sup> siècle (Villard, 1900). Il représente l’extrémité ouverte du spectre, avec les ondes électromagnétiques d’énergies supérieures à environ 100 keV. Le domaine  $\gamma$ , déjà exploré, est également singulier par son étendue qui couvre environ 9 ordres de grandeurs en longueur d’onde, soit autant que les ondes radio, micro-ondes et infrarouge réunis (Fig. 1.1).

L’astrophysique  $\gamma$  est généralement divisé en trois domaines distincts. Les deux premiers, les  $\gamma$  de basse énergie et de haute énergie s’étendent respectivement de 100 keV à 50 MeV et de 50 MeV à 100 GeV. Ils ne sont observables que depuis l’espace à cause de l’opacité de l’atmosphère à ces énergies. Le troisième domaine, celui des très hautes énergies, est constitué des photons de plus 100 GeV. Ces derniers peuvent être détectés à partir du sol en observant le rayonnement Cherenkov produit lors de l’interaction de ces photons avec l’atmosphère (Jelley, 1981). Seul le premier domaine, les photons  $\gamma$  de basse énergie, nous intéressera dans cette thèse et plus particulièrement les énergies comprises entre 100 keV et 10 MeV contenant les transitions nucléaires (Cameron, 1957).

### 1.1.2 Brève histoire de l’astronomie gamma

Une soixantaine d’années se sont écoulées entre la découverte des rayonnements  $\gamma$  par Paul Villard en 1900 et la première observation astrophysique. Deux raisons principales peuvent expliquer ce délai :

- Tout d’abord, l’atmosphère étant opaque aux rayons  $\gamma$ , il était nécessaire de s’élever au dessus de celle-ci (entre 35 et 40 km minimum) pour détecter les photons avant leurs diffusions. Pour cela, il est possible d’utiliser des ballons stratosphériques. Cependant, les temps de vol limité à quelques heures ne permettent pas de réaliser les longues poses (parfois des jours), rendues nécessaires par le faible flux des sources. Ainsi, l’astrophysique  $\gamma$  a due at-

tendre l'avènement de l'ère spatiale, après la seconde guerre mondiale et le développement des fusées V2, pour démarrer.

- Ensuite, le rayonnement cosmique engendrait un important bruit de fond instrumental, aveuglant les détecteurs, et rendant difficile la détection d'un signal significatif. Associé au faible flux des sources observées, l'important bruit de fond retardait donc davantage la première observation de rayonnements  $\gamma$  extraterrestre.

Malgré ces difficultés, en 1948 les instruments embarqués sur des fusées V2 permirent d'estimer le flux de rayons  $\gamma$  cosmique. Celui-ci s'est révélé plus de trois ordres de grandeurs inférieur au flux total de rayons cosmiques, composé principalement de protons et de noyaux atomiques (Perlow and Kissinger, 1951). C'est finalement en 1958, au dessus de Cuba, qu'un ballon stratosphérique profita d'une éruption solaire pour détecter le premier signal significatif d'un rayonnement  $\gamma$  (Peterson and Winckler, 1958).

Dans les années 60 et 70, l'avènement des observatoires en orbite terrestre a permis de développer l'astrophysique  $\gamma$  avec plusieurs découvertes majeures. En 1967, le satellite militaire Vela 4 a ainsi découvert, par hasard, le premier sursaut  $\gamma$  (Klebesadel et al, 1973). Seulement un an plus tard, le satellite Orbiting Solar Observatory 3 (OSO 3) détecte pour la première fois un rayonnement d'énergie supérieure à 100 MeV dans le plan de la galaxie (Kraushaar et al, 1972). En 1972 son descendant, OSO 7 fit la première observation d'une raie  $\gamma$  nucléaire dans le spectre solaire (Chupp et al, 1973).

En 1970, la raie d'annihilation  $e^-e^+$  à 511 keV fut observée pour la première fois, en provenance du centre galactique au cours d'un vol ballon (Johnson et al, 1972). La nature de la raie, mesurée à  $473 \pm 30$  keV, resta encore incertaine jusqu'à la confirmation par un deuxième vol ballon en 1971 (Johnson and Haymes, 1973) puis un troisième en 1977 grâce à un détecteur de germanium à haute résolution spectrale (Leventhal et al, 1978).

Les avancées technologiques dans le domaine de la spectroscopie fine permirent aux satellites HEAO-3 et SMM de découvrir respectivement, en 1979 la raie de l' $^{26}\text{Al}$  à 1809 keV dans la galaxie (Mahoney et al, 1984) et en 1981 la raie du  $^{56}\text{Co}$  à 847 keV dans la supernova SN-1987a (Matz et al, 1988). En 1984, SMM subit une panne qui obligea la navette Challenger à venir le réparer en orbite. Ce sauvetage permit au satellite de poursuivre sa mission jusqu'à sa rentrée dans l'atmosphère en 1989.

Durant les années 90, une nouvelle génération de satellites a permis de faire entrer l'astrophysique  $\gamma$  dans une nouvelle ère et d'en faire un domaine à part entière de l'astrophysique. L'instrument français SIGMA, à bord du satellite russe GRANAT, réussit à faire de l'imagerie fine dans les  $\gamma$  basse énergie grâce à son masque codé. Il identifia 30 sources dans la galaxie, parmi lesquelles on trouve des novae X (Goldwurm et al, 1992) et des candidats trou noirs (Grebenev et al, 1993). Durant la même période, l'observatoire américain Compton Gamma-Ray Observatory (CGRO) embarqua quatre instruments (BATSE, OSSE, Comptel et EGRET) dédiés à l'observation dans la bande 30 keV-30 GeV. Cette mission découvrit, entre autres, la distribution isotrope des sursauts  $\gamma$  (Meegan et al, 1992) avec l'instrument BATSE,



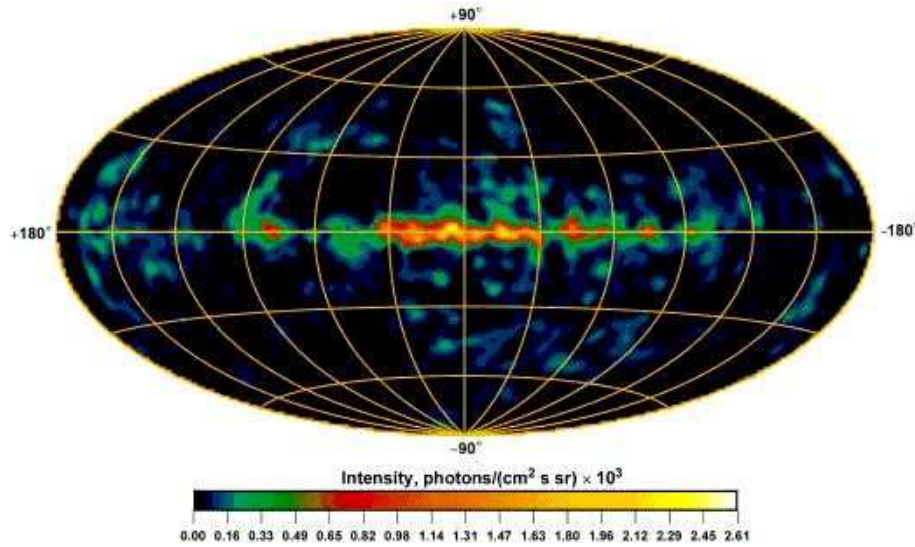


FIGURE 1.2 – Première carte de l' $^{26}\text{Al}$  dans la Voie Lactée par Comptel à bord de CGRO (Knödlseider, 1997).

et réalisa la première carte du ciel de l' $^{26}\text{Al}$  (Fig. 1.2) avec Comptel (Knödlseider, 1997).

En 2002, l'observatoire européen INTEGRAL fut lancé avec à son bord les instruments SPI et IBIS, munis de masques codés et capables d'étudier les sources  $\gamma$  dans la bande 15 keV-10 MeV. Cet observatoire, encore en service, a permis en autres de réaliser en 2008 la carte complète de l'antimatière dans la Voie Lactée, mettant en évidence une asymétrie (Fig. 1.3) comparable à la distribution des binaires X de faibles masses (Weidenspointner et al, 2008).

## 1.2 Principaux thèmes scientifiques dans le MeV.

---

Les principaux objectifs scientifiques présentés dans les paragraphes suivants sont issus de la proposition de mission, nommée DUAL, soumise à l'ESA en décembre 2010. Elle répond à l'appel d'offre M3 (mission de classe moyenne) du programme Cosmic Vision. Ces objectifs, non exhaustifs, correspondent à des interrogations de la communauté scientifique, dans le domaine du MeV et auxquelles une lentille de Laue pourrait apporter des réponses.

### 1.2.1 Physique des éruptions solaires

Il y a une cinquantaine d'années, c'est une forte éruption solaire qui a permis de détecter pour la première fois un rayonnement  $\gamma$  extraterrestre (Peterson and Winckler, 1958). Pourtant, les propriétés physiques de ce phénomène restent en partie méconnues.

Les grandes éruptions sont le théâtre d'une multitude d'émissions  $\gamma$ . Les raies proviennent à la fois de désexcitations nucléaires, de captures neutroniques et d'annihilations de positrons, avec un continuum issu du bremsstrahlung d'électrons

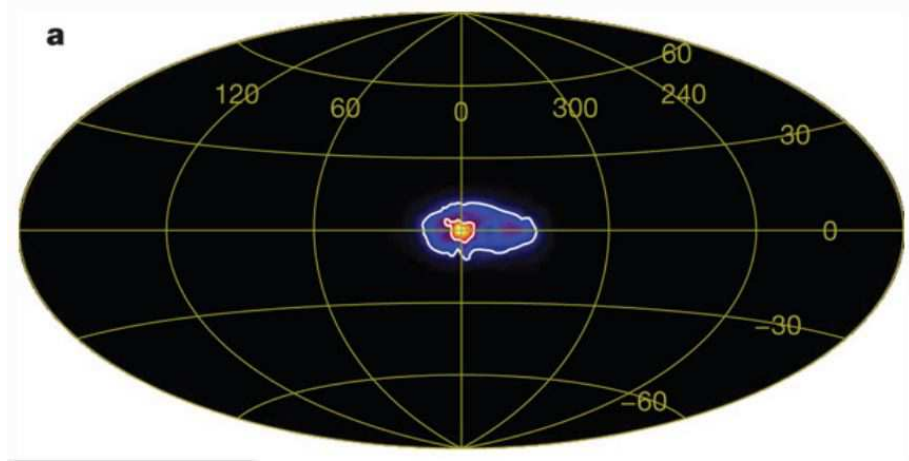


FIGURE 1.3 – Carte de l'émission de la raie d'annihilation  $e^+ - e^-$  à 511 keV dans la Voie Lactée, vue par SPI sur INTEGRAL (d'après Weidenspointner et al (2008)).

accélérés. Cette émission intense véhicule de nombreuses informations sur la composition, l'énergie et la distribution des particules chargées, ainsi que sur les propriétés des boucles magnétiques (Murphy et al, 2007).

Durant de grandes éruptions, le bombardement de l'atmosphère solaire par des ions lourds accélérés peut aussi produire des radio-isotopes, émettant des raies de décroissance plusieurs jours après l'éruption. L'observation de ces raies permettrait de mieux comprendre le mécanisme d'accélération et la composition des ions lourds dans les éruptions solaires (Tatischeff et al, 2006).

Ramaty and Mandzhavidze (2000) proposèrent également d'utiliser la décroissance retardée des radio-isotopes, dont le  $^{56}\text{Co}$ , créés par le bombardement d'ions accélérés, pour étudier les phénomènes de brassage et de transport dans l'atmosphère solaire.

### 1.2.2 Physique de l'explosion de supernovae de type Ia

Les supernovae de type Ia (SN-Ia) ont longtemps été considérées comme homogènes et résultant de l'explosion d'une naine blanche C-O accréant de la matière d'une étoile compagnon. Cette apparente homogénéité a incité à leur utilisation comme chandelles standards. Elles furent alors couramment utilisées en cosmologie pour déterminer des distances extragalactiques. Toutefois, en 1991, les observations de SN 1991bg (Filippenko et al, 1992) et SN 1991T (Phillips et al, 1992) ont remis en cause cette homogénéité, et mis en évidence notre incompréhension de ces objets. La nature et la diversité des progéniteurs et la relation empirique entre leur courbe de lumière et leur luminosité restent encore à éclaircir.

Actuellement, les principaux modèles de SN-Ia peuvent être séparés en deux classes générales. La première est constituée de l'explosion du centre d'une naine blanche de type C/O, proche de la masse de Chandrasekhar. La seconde est formée par la détonation d'une couche d'hélium autour d'une naine blanche de plus faible masse (Sub-Chandrasekhar) (Pinto et al, 2001). L'explosion selon ce dernier modèle produit une plus grande quantité de rayonnement issus de la chaîne de décroissance

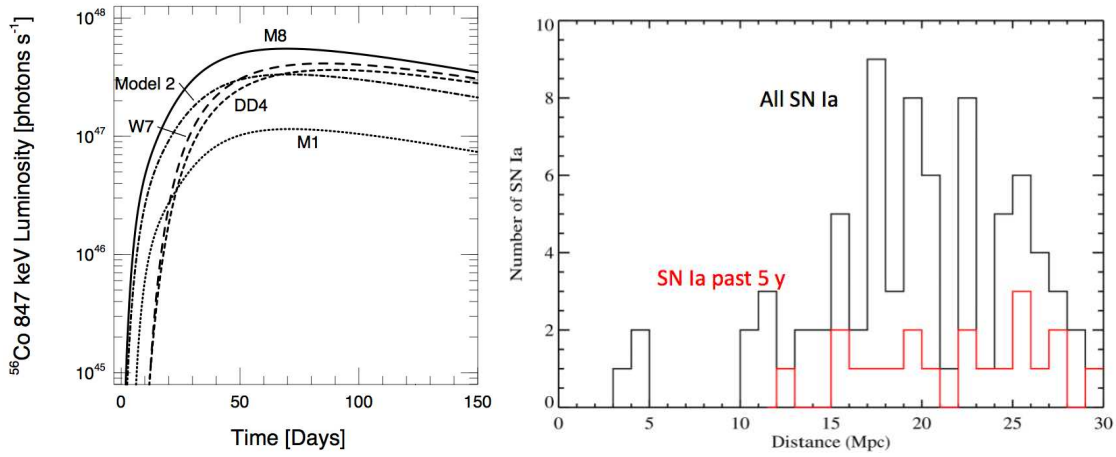


FIGURE 1.4 – A gauche : Modèles de courbe de lumière de la raie à 847 keV dans les SN-Ia. Les modèles Sub-Chandrasekhar (M1, M8, model2) possèdent une luminosité maximale plus précoces que les autres modèles de type Chandrasekhar (d’après Pinto et al (2001)). A droite : Taux de SN-Ia en fonction de la distance. La courbe inférieure représente le nombre d’objets détectés durant les cinq dernières années.

$^{56}\text{Ni} \rightarrow ^{56}\text{Co} \rightarrow ^{56}\text{Fe}$ . L’observation des principales raies à 847 keV et 158 keV permettrait alors de différencier sans ambiguïté les différents modèles de SN-Ia (Pinto et al, 2001).

Le temps nécessaire, après l’explosion, pour obtenir la luminosité maximale des raies de décroissance dépend également du modèle de SN-Ia. Ainsi l’étude minutieuse des courbes de lumières à 158 keV et 847 keV constitue un autre test des mécanismes d’explosion (Fig. 1.4 à gauche).

L’étude de ces raies reste pour l’instant impossible à cause du manque de sensibilité des détecteurs dans le domaine du MeV, qui ne permettent la détection des SN-Ia que dans un rayon d’environ 8 Mpc. L’observation d’une SN-Ia par an nécessiterait une sensibilité suffisante pour les détecter dans un rayon d’environ 20 Mpc (Fig. 1.4 à droite)

### 1.2.3 Antimatière dans la galaxie

La rencontre d’un électron et d’un positron, de masse égale et de charge opposée, provoque leur annihilation et l’émission, d’une raie à 511 keV, ou d’un continuum de positronium (les mécanismes d’émission sont présentés §1.3.4).

Les premières cartes du ciel de cette émission furent établies par CGRO/OSSE (Purcell et al, 1997) puis, plus récemment, par INTEGRAL/SPI (Knödlseeder et al, 2005). Cette dernière carte a montré une forte concentration dans le bulbe galactique, mais également une asymétrie le long du disque, privilégiant faiblement les longitudes négatives (Fig.1.3). Malgré cette avancée spectaculaire, les sources de positrons ainsi que leurs zones d’annihilation restent encore mystérieuses. L’émission semble diffuse et aucune source n’a encore pu être localisée, tandis que le flux au delà du disque central ( $< 50^\circ$ ) n’a pas encore été cartographié.

Plusieurs candidats coexistent pour expliquer l'émission de positrons dans la galaxie. La corrélation entre l'asymétrie de l'émission à 511 keV et la distribution des binaires X de faibles masses (LMXB) laisserait penser que celles-ci sont en partie responsables de cette émission (Weidenspointner et al, 2008). Une partie de la production de positron pourrait également provenir de la décroissance  $\beta^+$  de radio-isotopes, produit par des étoiles massives et répandus dans le milieu interstellaire (Kalemci et al, 2006).

Parmi les autres hypothèses avancées, la forte émission à 511 keV dans le centre galactique suggère une possible connexion avec la matière noire, dont une forte concentration est attendue au même endroit (Boehm et al, 2004) (Hooper and Goodenough, 2010).

Une cartographie plus fine des régions d'émission à 511 keV permettrait de clarifier la situation et de mieux comprendre l'origine de l'antimatière dans la Voie Lactée. L'énergie cinétique des positrons et électrons lorsqu'ils s'annihilent conduit à un élargissement de la raie. Une spectroscopie plus fine de cet élargissement permet également de remonter aux conditions physiques du plasma émetteur (Jean et al, 2006).

### 1.2.4 Rayonnement cosmique de basse énergie

Le rayonnement cosmique de basse énergie joue un rôle primordial dans la chimie et la dynamique du milieu interstellaire en ionisant et en chauffant les nuages moléculaires. L'importante quantité de  $H_3^+$ , récemment observée dans les nuages diffus interstellaires, ne peut être maintenue que par un fort taux d'ionisation de l'hydrogène moléculaire  $H_2$ . Ce taux semble ainsi un ordre de grandeur supérieur à celui prédit par le taux "standard" de rayonnement cosmique (Indriolo et al, 2009).

Les collisions du rayonnement cosmique avec le milieu interstellaire sont supposées produire des raies  $\gamma$  provenant des désexcitations nucléaires, dont l'énergie est comprise entre 0.1 et 10 MeV, ainsi que les éléments légers *Li*, *Be* et *B*. L'observation de ces raies, et plus particulièrement celles du  $^{56}Fe$  à 847 keV, de l' $^{16}O$  à 6,1 MeV, et du  $^{12}C$  à 4,4 MeV, permettrait de déterminer la composition et la distribution de taille des grains de poussière dans le milieu interstellaire de la galaxie (Tatischeff and Kiener, 2004).

Le rayonnement cosmique de basse énergie n'est pas directement détectable dans l'environnement proche de la Terre, sous l'influence du soleil. L'observation de son interaction avec le milieu interstellaire permettrait également de connaître sa distribution et sa composition dans la Voie Lactée.

### 1.2.5 Étoiles à neutron isolées

**Accélération de particules dans les jeunes pulsars.** Les champs magnétiques et de gravité extrêmes, régnant dans une étoile à neutron en rotation rapide (pulsar) en font un excellent laboratoire pour étudier les processus physiques en conditions extrêmes. Les particules piégées dans la magnétosphère émettent des photons de hautes énergies via différents processus d'émission, tel que le rayonnement synchrotron ou l'inverse Compton.

Depuis 2008 et le lancement de Fermi, la physique des pulsars a connu de grandes avancées, avec plus de 64 pulsars détectés à plus de 100 MeV, permettant une étude de population. Toutefois, les pulsars les plus jeunes, de moins de  $2 \cdot 10^4$  ans, ayant un maximum d'émission dans le MeV, restent encore mal connus.

**Accélération de particules dans les nébuleuses de pulsars.** Les jeunes pulsars sont souvent entourés d'une nébuleuse, formée du vent de particules relativistes qu'ils émettent (PWN : Pulsar Wind Nebula). La plupart de l'énergie dissipée, lorsque le pulsar ralenti sa rotation, est dissipée par l'interaction du PWN avec la matière environnante. L'étude de l'émission dans le MeV qui découle de cette interaction, pourrait permettre de mieux comprendre les processus physiques agissant dans la magnétosphère et son environnement proche.

### 1.2.6 Sursauts gamma

Les sursauts gamma (Gamma Ray Burst, GRB) sont les explosions les plus lumineuses au sein de l'univers. Ils offrent la possibilité de découvrir, entre autres, la phase finale d'évolution des étoiles massives, la physique de la matière relativiste et la formation de trous noirs de taille stellaire. Leur propriétés uniques en font également des sources prometteuses d'émission non photonique (neutrinos et rayonnement cosmique). De plus, grâce à leur grand redshift et leur grande luminosité, les GRB possèdent un grand potentiel pour l'étude des modèles cosmologiques.

Les GRB de longues durées ( $> 2s$ ) sont probablement la signature de la mort d'étoiles massives en rotation ("collapsars") et sont reliées aux supernovae de type Ib/c. Les GRB de plus courtes durées ( $< 2s$ ) sont supposées provenir de la fusion de deux étoiles à neutrons.

Malgré les progrès significatifs qui ont pu être faits dans la compréhension des progéniteurs, de la diffusion rémanente et des galaxies hôtes, des caractéristiques fondamentales des GRB restent inexplorées. Malgré de nombreux efforts théoriques (Piran, 2004), le spectre non thermique des GRB sont encore méconnu. De manière plus générale, la composition, la magnétisation et la géométrie des éjectas relativistes restent un mystère.

### 1.2.7 Radioactivité galactique

L'émission diffuse de raies  $\gamma$  nucléaires au sein du milieu interstellaire offre l'opportunité d'étudier l'évolution stellaire et la production continue d'éléments. La décroissance de l' $^{26}\text{Al}$  montre directement un million d'années (demie-vie de  $\sim 7 \cdot 10^5$  années) d'activité des étoiles massives et des supernovae dans notre galaxie.

**Décroissance de l' $^{26}\text{Al}$**  La décroissance de l'isotope  $^{26}\text{Al}$  produit une raie à 1,809 MeV avec une demie-vie d'environ  $7 \cdot 10^5$  années. Cette longue durée de vie lui permet de se propager dans le milieu interstellaire avant d'émettre et produit une émission diffuse. Il s'agit de la radioactivité la plus apparente dans le ciel et Comptel la cartographie dans les régions centrales de la galaxie avec un flux d'environ  $3 \cdot 10^{-4} \text{ ph/cm}^2/\text{s}$  (Fig. 1.2). Cette distribution pourrait être expliquée par le vent et

l'explosion d'étoiles massives. L'étude de cette émission diffuse permet de connaître l'évolution et la nucléosynthèse des étoiles massives produisant cet isotope.

**Décroissance du  $^{60}\text{Fe}$**  L'isotope  $^{60}\text{Fe}$  (demie-vie d'environ  $2.6 \cdot 10^6$  années) est produit par capture neutronique au sein d'étoiles massives. INTEGRAL a détecté l'émission du  $^{60}\text{Co}$ , un noyau fils du  $^{60}\text{Fe}$  avec un flux total d'un ordre de grandeur inférieur à celui de l' $^{26}\text{Al}$ . Toutefois, l'observation des raies du  $^{60}\text{Fe}$  à 1,173 et 1,332 MeV et des taux de  $^{60}\text{Fe}$  et  $^{26}\text{Al}$  permettrait de contraindre les différents modèles de nucléosynthèse des supernovae à effondrement de coeur, capables de produire cet isotope.

**Décroissance du  $^{44}\text{Ti}$**  Egaleme nt produit dans les supernovae à effondrement de coeur, le  $^{44}\text{Ti}$  possède une demi-vie d'environ 59 ans et produit une raie à 1,16 MeV. Son observation pourrait fournir une source d'information complémentaire sur les mécanismes d'explosion et la dynamique de l'expansion des supernovae.

### 1.2.8 Novae

Les novae sont supposées être l'explosion d'une couche d'hydrogène à la surface d'une naine blanche accrétante. L'émission des novae devrait être en partie produite par l'annihilation  $e^- - e^+$  (les positrons provenant de décroissance  $\beta^+$  des isotopes  $^{13}\text{N}$ ,  $^{18}\text{F}$  et  $^{22}\text{Na}$ ) et des rais nucléaires issues des décroissance d'isotopes ( $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ).

L'observation de cette émission au sein des novae permettrait d'étudier les propriétés dynamiques de l'enveloppe, l'efficacité de la convection ainsi que la quantité relative de  $^{13}\text{N}$ ,  $^{18}\text{F}$  et  $^{22}\text{Na}$ . La difficulté principale liée à l'observation des novae est similaire à celle des SN-Ia évoquées précédemment. La sensibilité actuelle des instruments cantonne les observations dans un rayon encore trop limité, pour détecter un nombre significatif de source dans le domaine gamma.

### 1.2.9 Noyaux actifs de galaxies

Les noyaux actifs de galaxie (Active Galaxy Nucleus, AGN) hébergent en leur centre un trou noir accrétant super-massif (de l'ordre de  $10^6$  à  $10^9$  masses solaires). Il s'agit des objets compacts les plus énergétiques de l'univers et possèdent pour la plupart un pic d'émission dans le MeV. Ainsi, seules les observations dans ce domaine spectral permettront de vérifier les modèles d'émission pour ce type d'objets et de déterminer l'énergie totale libérée.

L'observation des AGN dans le MeV doit également permettre de faire le lien entre l'émission synchrotron dans les rayons X et l'inverse Compton en  $\gamma$ , dont seule une partie à plus de 100 MeV a été détectée.

Les disques d'accrétion autour des AGN, ainsi que leur jets, sont supposés émettre des rayonnements polarisés. Dans le cas du disque d'accrétion, le degré de polarisation dépend de l'angle d'émission par rapport à son disque et de la profondeur optique de la région d'émission. Pour un disque optiquement épais, une polarisation d'environ 10% est attendue (Lei et al, 1997). Pour les jets, l'étude de la

polarisation pourrait apporter des informations sur la physique et la géométrie des zones d'émission et ainsi contribuer à une meilleure compréhension de ces objets.

### 1.3 Principes d'émission des raies gamma

---

Dans le cadre de la lentille de Laue, la compréhension des objets astrophysiques, cités dans les objectifs scientifiques, passe par la détection et l'étude du rayonnement  $\gamma$  de faible énergie qu'ils émettent. Ce rayonnement renferme une grande quantité d'information sur l'émetteur, sous la forme de son spectre, sa courbe de lumière, sa polarisation ou sa distribution spatiale.

Les propriétés des rayonnements sont intimement liées au processus d'émission qui les ont fait naître. Les processus physiques permettant d'émettre des raies  $\gamma$  dans la bande 0.1-2 MeV, sont listés dans les paragraphes suivants.

#### 1.3.1 Désexcitation nucléaire

Les noyaux atomiques sont constitués de protons et de neutrons dont l'énergie est quantifiée. Tout comme le cortège électronique, l'énergie du noyau ne peut prendre que des valeurs discrètes. Le spectre d'un nucléide, émis lorsqu'il passe d'un état excité à un état stable, lui est propre et permet de l'identifier.

Le noyau fils issu d'une désintégration de type  $\alpha$ ,  $\beta^-$  ou  $\beta^+$  (c.f. § suivant) est généralement dans un état excité et peut alors revenir à un état stable en émettant un rayonnement  $\gamma$  caractéristique.

L'excitation d'un noyau peut également être le fruit d'une collision avec une particule de haute énergie. Celle-ci peut céder une partie de son énergie au nucléide, au cours d'une diffusion inélastique, ou lui arracher un ou plusieurs nucléons (réaction de spallation, le noyau change de nature). Les raies  $\gamma$  de désexcitation nucléaire qui sont alors émises, pour revenir à un état stable, sont situées dans la bande 0.1-10 MeV.

#### 1.3.2 Désintégration de radionucléides

Si l'on représente sur un diagramme l'ensemble des noyaux en fonction du nombre de leurs neutrons et protons, on obtient le tableau des nucléides stables et radioactifs (Fig. 1.5). Les noyaux en noir sont situés dans la vallée de stabilité tandis que les autres, beaucoup plus nombreux, sont instables par un excès de neutrons ou de protons. Ceux-ci vont alors tendre à devenir stable par une ou plusieurs désintégrations successives.

Les trois types de désintégration possibles sont :

- désintégration  $\beta^-$  qui conduit à l'émission d'un électron et d'un antineutrino
- désintégration  $\beta^+$  qui conduit à l'émission d'un positron et d'un neutrino
- désintégration  $\alpha$  qui conduit à l'émission d'un noyau d'hélium.

Le noyau fils issu d'une désintégration se trouve généralement dans un état excité. Il émet alors un rayonnement  $\gamma$  pour revenir à un état stable (c.f. § précédent).

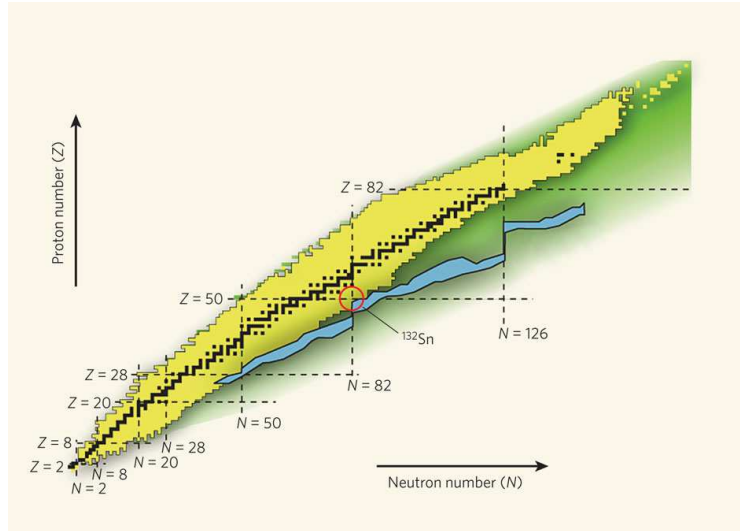


FIGURE 1.5 – Diagramme des isotopes, stables (en noir), et instables (en jaune). Les isotopes instables en vert sont ceux n'ayant pas encore été observés, tandis que ceux en bleu sont issus de capture neutronique rapide (r-process) (d'après Cottle (2010)).

La désintégration d'une population de noyaux radioactifs est caractérisée par leur durée de demi-vie, c'est à dire la période nécessaire pour que la moitié des noyaux se soit désintégrée. Selon la nature du noyau, cette demi-vie peut s'étaler d'une fraction de seconde à plusieurs milliards d'années.

Ainsi en astrophysique nucléaire, les isotopes à longue durée de vie, tel que l' $^{26}\text{Al}$  (721 000 ans de demi-vie) ont le temps de se diffuser suffisamment loin de leur site de nucléosynthèse pour créer une émission diffuse (Plüschke et al, 2001). Au contraire, les noyaux à courte durée de vie, comme le  $^{56}\text{Co}$  produit par les SN-Ia (0.216 année de demi-vie), apparaissent comme des sources ponctuelles (Morris et al, 1995).

#### 1.3.3 Capture neutronique

Lorsqu'un noyau est soumis à un bombardement de neutrons rapides, celui-ci peut être absorbé pour former un isotope de l'élément cible. La capture neutronique est suivie d'un réarrangement des nucléons qui se traduit par l'émission d'un ou plusieurs photons  $\gamma$ .

Le processus de capture neutronique sur l'hydrogène, pour former du deutérium ( $^1\text{H} + n \rightarrow ^2\text{H} + \gamma$ ), est à l'origine de la raie à 2,223 MeV observée pour la première fois lors des éruptions solaires du 4 et 7 août 1972 (Chupp et al, 1973) avec OSO-7. Cette raie fut ensuite largement étudiée par différents observatoires tel que HEAO-3 (Prince et al, 1982), et plus récemment RHESSI (Lin et al, 2002).

#### 1.3.4 Raie d'annihilation $e^+ - e^-$

Le positron constitue l'anti-particule de l'électron, de même masse et de charge opposée. Il peut être produit par :

- La désintégration  $\beta^+$  d'un élément radioactif.



- La création de paire  $e^+ - e^-$  à partir d'un seul photon d'énergie supérieure à  $2m_e c^2$ , c'est à dire 1,022 MeV, dans un environnement à champ fort (électrique, magnétique ou gravitationnel).
- La création de paire  $e^+ - e^-$ , à partir de deux photons dans un milieu à champ fort et dont les énergies remplissent la condition  $E_1 E_2 > (m_e c^2)^2$ .
- La désintégration du pion chargé  $\pi^+$  qui produit dans 100% des cas un positron.
- La désintégration du pion neutre  $\pi^0$  qui produit dans 1,198% des cas une paire  $e^+ - e^-$  et un photon  $\gamma$ .

Lorsqu'un électron et un positron se rencontrent, ils s'annihilent selon deux modes distincts. L'annihilation peut être directe en émettant deux photons de 511 keV ou bien indirecte en créant un positronium (état lié). Ce positronium peut alors se transformer, soit en deux photons de 511 keV dans un quart des cas (parapositronium), soit en trois photons ou plus, avec une énergie cumulée de 1022 keV (orthopositronium).

Le spectre émis lors de l'annihilation  $e^+ - e^-$  contient une raie caractéristique à 511 keV, ainsi qu'un continuum (continuum de positronium) en dessous de 511 keV, issu de l'orthopositronium.

### 1.3.5 Raie cyclotron

Lorsque des électrons sont piégés dans de forts champs magnétiques, ils décrivent des trajectoires en forme de spirale autour des lignes de champ, sous l'influence de la force de Lorentz. Les niveaux d'énergie des électrons sont alors quantifiés par les niveaux de Landau et l'énergie de transition entre deux niveaux est définis par :

$$E_\gamma = \frac{heB}{m_e c} \approx 11,6 B_{12} [keV] \quad (1.1)$$

où  $h$  est la constante de Planck,  $e$  et  $m_e$  la charge et la masse de l'électron et  $B_{12}$  l'intensité du champ magnétique exprimé en unité de  $10^{12}$  gauss.

Les pulsars ou les magnétars possèdent des champs magnétiques suffisamment intenses pour amener l'énergie de transition entre les niveaux de Landau jusqu'au domaine  $\gamma$ . Ainsi, la mesure de l'énergie des raies cyclotrons, d'absorption ou d'émission, permet de déterminer l'intensité du champ magnétique autour de l'objet (Coburn et al, 2006).

La première raie cyclotron fut observée en 1976 en provenance du pulsar Hercules-X1 au cours d'un vol ballon (Trumper et al, 1978). Depuis, de nombreuses autres source de raies cyclotron ont pu être détectées grâce entre autres aux télescopes HEAO-1, RXTE, Beppo-SAX et INTEGRAL.

### 1.3.6 Emission de continuum

Les processus d'émission cités précédemment sont à l'origine des raies  $\gamma$  dont l'énergie centrale est bien déterminée. Toutefois, les sources astrophysiques sont également capables de produire des continuums, avec un spectre continu dont l'étendue dépend des propriétés de l'émetteur.

**Rayonnement synchrotron** Le rayonnement synchrotron se produit lorsque des particules chargées (généralement des électrons) relativistes sont injectés dans une région à champ magnétique. Si le plasma est suffisamment raréfié et que les collisions sont rares, l'électron suit une trajectoire en spirale autour des lignes de champ sous l'effet de la force de Lorentz. Or d'après les équations de Maxwell, une particule chargée et accélérée émet un rayonnement électromagnétique. Si la particule est relativiste ou ultra-relativiste, le spectre émis est assimilé à un spectre continu en loi de puissance (contrairement aux raies cyclotrons citées précédemment). Celui-ci peut couvrir une large gamme d'énergie, des infrarouges aux gamma de basses énergies.

**Diffusion Compton inverse** Lorsqu'un électron relativiste interagit avec un photon peu énergétique, ce dernier peut gagner de l'énergie en provenance de l'électron. Ce processus de diffusion inélastique d'un électron sur un photon, appelé diffusion Compton inverse, est capable d'amener le photon dans le domaine  $\gamma$ . Ce type d'émission pourrait se produire au sein de jets relativistes, en interagissant avec le fond diffus cosmologique (Tavecchio et al, 2000)

**Rayonnement de freinage, Bremsstrahlung** Le rayonnement de freinage, aussi appelé Bremsstrahlung, est produit par interaction électrostatique d'un électron sur une autre particule chargée. En d'autres termes, il s'agit de la déviation de la trajectoire d'un électron par un noyau atomique. Tout comme le rayonnement synchrotron, l'accélération de l'électron produit un rayonnement continu dont l'énergie maximale dépend de l'énergie cinétique de l'électron incident. Ce type d'émission est couramment observée en X au sein du gaz baignant les groupes de galaxies (Mushotzky et al, 1978)

## 1.4 Les instruments d'observation existants

---

Dans les paragraphes suivants, nous allons nous intéresser aux instruments actuellement utilisés dans le domaine 0,1-2 MeV, et à leurs limitations. Les méthodes de détection des rayons  $\gamma$  seront rapidement évoquées, pour s'intéresser plus longuement au thème de cette thèse, les systèmes optiques permettant de déterminer la direction d'incidence du photon.

### 1.4.1 Principes de détection des rayonnements $\gamma$

De manière générale pour qu'un photon soit détecté, l'énergie de celui-ci doit être convertie en signal électrique, puis amplifié avant de suivre la chaîne de traitement électronique.

Pour créer un signal électrique, le photon doit tout d'abord interagir avec le volume du détecteur en libérant un électron rapide. Il existe trois types d'interactions possibles entre le rayonnement et la matière, permettant de libérer un électron :

- Effet photoélectrique : si l'énergie du photon est suffisante, celui-ci est absorbé et un électron est libéré du cortège électronique de l'atome cible.

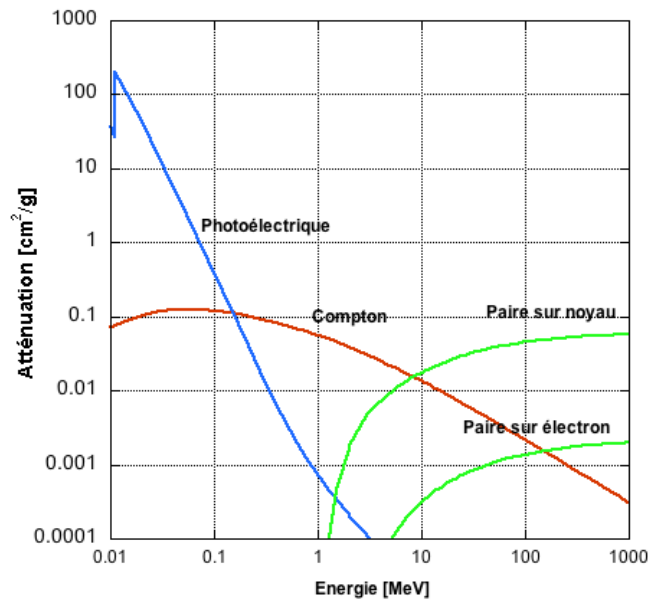


FIGURE 1.6 – Dépendance en énergie des différentes interactions des photons dans le germanium (source : XCOM database).

- Diffusion Compton : diffusion inélastique d'un photon sur un électron du cortège électronique de l'atome cible. Une partie de l'énergie du photon est transférée à l'électron qui est éjecté.
- Création de paire  $e^+ - e^-$  (c.f. §1.3.4) : Un électron et un positron se matérialisent à proximité d'un noyau atomique ou d'un électron.

La probabilité pour que ces interactions se produisent dans le volume du détecteur varie avec sa composition et l'énergie du photon incident. La Figure 1.6 montre le coefficient d'atténuation en fonction de l'énergie, en prenant le germanium pour exemple. Dans le domaine des rayons  $\gamma$  nucléaires (entre environ 0,1 et 10 MeV), les interactions avec le détecteur semi-conducteur sont ainsi dominées par la diffusion Compton.

Si l'énergie est suffisante, les photons peuvent subir plusieurs interactions successives avant de perdre suffisamment d'énergie pour finalement être absorbés par effet photoélectrique.

Les électrons primaires, libérés ou matérialisés le long du trajet du photon dans le détecteur, perdent rapidement leur énergie en interagissant avec le matériaux le constituant. Plusieurs processus peuvent alors survenir, selon le type de détecteur utilisé :

- **Scintillateur** : l'électron primaire excite les électrons du scintillateur sur son passage. Leur de-excitation par des niveaux d'énergie intermédiaires produit l'émission de photons visibles. Ceux-ci peuvent alors être collectés puis amplifié par des photomultiplicateurs.
- **Détecteur à gaz** : l'électron primaire ionise le gaz contenu dans le détecteur le long de sa trajectoire. Un fort champ électrique sépare et collecte les électrons

secondaires et les ions ainsi créés. Si le champ est suffisamment puissant, les électrons secondaires peuvent être accélérés et ioniser à leur tour d'autres électrons en produisant une cascade, amplifiant le signal.

- **Détecteur à semi-conducteur** : l'électron primaire libère sur son trajet des électrons secondaires au sein d'un semi-conducteur. Les électrons, arrivant dans la bande de conduction, peuvent alors être séparés des trous et collectés par un champ électrique. Dans le domaine  $\gamma$ , les semi-conducteurs les plus utilisés sont constitués de germanium, de silicium ou de tellure de cadmium.

Si le photon incident est complètement absorbé, après une ou plusieurs interactions, toute son énergie a été transférée au détecteur et il est possible de mesurer son énergie totale. Toutefois, un autre scénario est possible, si le photon ressort du détecteur après une ou plusieurs diffusions. Dans ce cas, une partie de l'énergie du photon incident n'a pas été transférée au détecteur et la mesure de l'énergie devient incomplète.

### 1.4.2 Télescope à modulation d'ouverture

Un détecteur seul est incapable de déterminer la provenance du photon incident, il ne peut donc pas identifier la source émettrice. Pour cela, il est nécessaire d'ajouter à l'instrument un système optique. Le collimateur en est l'exemple le plus simple, réduisant l'ouverture du détecteur à une portion du ciel.

Il existe deux grandes familles de systèmes optiques, ceux à modulation temporelle et ceux à modulation spatiale.

**Modulation temporelle** Les télescopes à modulation temporelle modifient leur ouverture au cours du temps pour déterminer la distribution spatiale de la source. Le télescope HEAO3, muni d'un collimateur, était capable de déterminer l'origine d'une source, simplement en changeant de pointage et en balayant le ciel au cours du temps.

Dans le cas de RHESSI (Lin et al, 2002), la modulation temporelle est effectuée grâce à la rotation de l'ensemble du satellite, constitué de neuf collimateurs et détecteurs. Chaque collimateur est composé de deux grilles identiques séparées de 1,55 m (Fig. 1.4.2). Cette technique, nommée RMC (Rotation Modulation Collimator), permet de déterminer la position de la source par déconvolution de Fourier des événements détectés au cours du temps. Il est ainsi possible d'obtenir une bonne résolution angulaire (2,3 arcsec à 100 keV et 36 arcsec au dessus du MeV), sans utiliser de détecteur pixélisé.

**Modulation spatiale** Cette technique vise à modifier l'ouverture du télescope en insérant un masque codé devant le détecteur. Ce masque est constitué d'une alternance de zones opaques et transparentes aux  $\gamma$  (Fig. 1.4.2). Si le motif du masque ainsi que son ombre sur le détecteur sont parfaitement connus (nécessite un détecteur pixélisé), il est possible de remonter à la position de la source par une déconvolution de Fourier (Skinner et al, 1987).

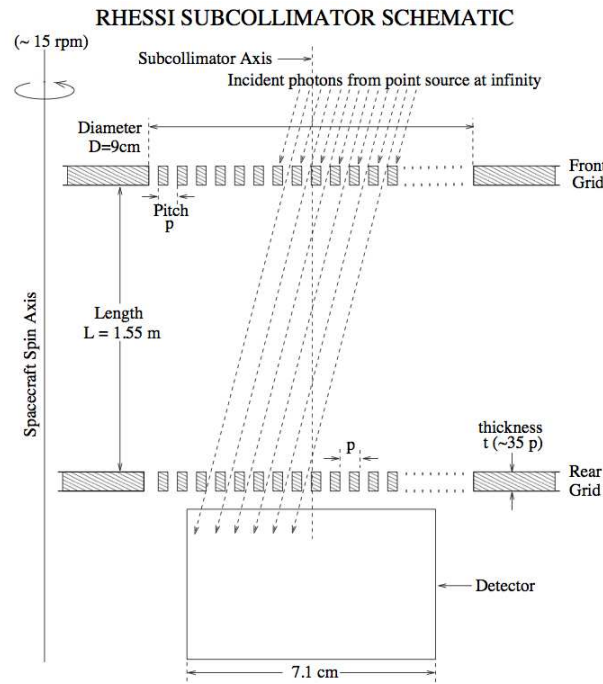


FIGURE 1.7 – Principe du télescope RHESSI utilisant la modulation temporelle RMC (Rotation Modulation Collimator) (d'après Hurford et al (2002)).

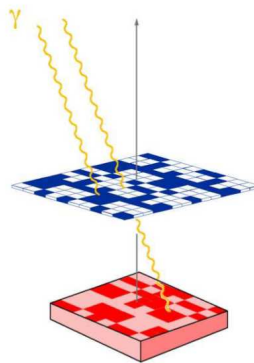


FIGURE 1.8 – Principe du télescope à masque codé. L'ombre du masque sur le détecteur permet de remonter à la position de la source.

La technique du masque codé a été utilisée entre 1989 et 1995, sur l'instrument SIGMA (Paul et al, 1991) à bord de l'observatoire russe GRANAT, puis sur les instruments SPI et IBIS à bord d'INTEGRAL (toujours en service).

IBIS intègre un masque, de 53x53 éléments rectangulaires opaques (en tungstène) et transparents, et deux détecteurs pixélisés superposés de CsI et CdTe. Sa résolution angulaire atteint 12 arcmin dans un champ de vue de 9 degrés. Sa sensibilité de raie ( $3\sigma$ ,  $10^6$ s) varie de  $1,3 \cdot 10^{-5}$  ph/cm<sup>2</sup>/s à 100 keV et  $3,8 \cdot 10^{-4}$  ph/cm<sup>2</sup>/s à 1 MeV (Ubertini et al, 2003).

SPI utilise un masque codé de 63 éléments hexagonaux opaques et un plan de détection, constitué de 19 détecteurs HPGe (germanium de haute pureté) de haute résolution spectrale (entre 2 keV à 300 keV et 3 keV à 2 MeV). Entre 100 keV et 1 MeV, la sensibilité de raie ( $3\sigma$ ,  $10^6$ s) oscille autour de  $3 \cdot 10^{-5}$  ph/cm<sup>2</sup>/s (Roques et al, 2003).

### 1.4.3 Télescope Compton

Comme nous l'avons vu précédemment, la diffusion Compton est l'interaction la plus probable dans les semi-conducteurs de silicium ou germanium, dans la bande des  $\gamma$  nucléaires. Dans ce cas, le photon incident cède une partie de son énergie à un électron et subit une déviation d'un angle :

$$\varphi = \arccos \left[ 1 - m_e c^2 \left( \frac{1}{E_r} - \frac{1}{E_{tot}} \right) \right] \quad (1.2)$$

où  $E_r$  et  $E_{tot}$  sont respectivement l'énergie cédée à l'électron (énergie de recul) et l'énergie totale du photon incident.

Les télescopes Compton utilisent cette diffusion pour déterminer la position d'une source. Les plus simples sont constitués de seulement deux plans de détection superposés. Le premier plan sert de diffuseur, il doit donc être suffisamment peu absorbant pour favoriser une diffusion unique. Le second plan sert de calorimètre, suffisamment dense et épais pour absorber totalement le photon diffusé. La mesure précise des énergies et des positions d'interaction (pixélisation fine) permet de contraindre la direction d'incidence du photon sur un cône, dont l'axe passe par les deux positions d'interaction successives, et d'ouverture  $\varphi$  (Fig. 1.4.3).

La technique d'imagerie Compton a été utilisée avec succès par Comptel (de 0,7 à 30 MeV) à bord de CGRO, entre 1991 et 2000. Elle permet de bénéficier d'un très large champ de vue et différentes techniques permettent de réduire le bruit de fond sans avoir recours à de lourds blindages.

- Dans le cas de scintillateurs organiques (CGRO/Comptel), les neutrons interagissant avec le détecteur peuvent être rejetés grâce à la forme spécifique de l'impulsion détectée.
- Si les détecteurs sont suffisamment espacés, la mesure du temps de vol entre deux interactions permet de rejeter tout autre scénario que celui décrit plus haut (diffusion dans le premier plan puis absorption).

Toutefois, les télescopes Compton cumulent deux limitations majeures. Tout d'abord, comme les électrons cibles ne sont ni libres ni au repos, une incertitude de plusieurs dizaines de minutes d'arc persistera, même avec une mesure extrêmement

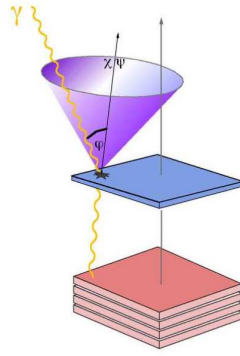


FIGURE 1.9 – Principe du télescope Compton. Le photon incident subit une diffusion Compton dans le premier détecteur puis est absorbé dans le second. La connaissance des positions d'interactions et des énergies déposées permet de contraindre la direction d'incidence sur un cône. Plusieurs photons sont donc nécessaires pour remonter à la position de la source.

fine (limite Doppler (Zoglauer and Kanbach, 2003)). Ainsi en pratique, la direction d'incidence du photon  $\gamma$  n'est pas contrainte sur un cercle mais sur un anneau de 1 ou 2 degrés de large.

La deuxième limitation, inhérente à la technique Compton, est liée à l'enchaînement d'interactions nécessaire à la détection. Le scénario idéal décrit dans les paragraphes précédents, avec une seule interaction dans le premier plan puis une absorption totale dans le second, ne se produit que rarement. En pratique, ce phénomène limite l'efficacité de détection à moins de 10% (2% seulement pour Comptel).

### 1.4.4 Limitations des télescopes existants

Les différentes technologies évoquées précédemment partagent une même limitation, inhérente au concept des télescopes. Le détecteur est utilisé à la fois pour collecter les photons  $\gamma$  et pour les détecter. Ainsi, pour les instruments existants, l'augmentation de la sensibilité ne peut se faire qu'en augmentant le volume du détecteur, et en même temps le niveau de bruit de fond.

Une solution pour améliorer la sensibilité, serait de découpler les surfaces de collection et de détection, comme les télescopes à miroir utilisés dans les autres domaines d'énergie. Il serait ainsi possible d'augmenter la surface collectrice sans augmenter le bruit de fond dans le détecteur.

La focalisation des photons a longtemps été limitée à 10 keV, avec les miroirs à incidences rasantes de XMM puis 80 keV avec les miroirs multicouches de NuSTAR (Harrison et al, 2005). Au delà de 100 keV, les techniques classiques de déviation des photons, par réflexion ou réfraction, deviennent inutilisables.

L'une des techniques, employée pour dévier les photons  $\gamma$  au delà de 100 keV, consiste à utiliser la diffraction de Bragg au sein de cristaux. Le développement de cette méthode pour la réalisation d'un télescope spatial constitue le sujet de cette thèse, dont le principe est exposé dans les paragraphes suivants.

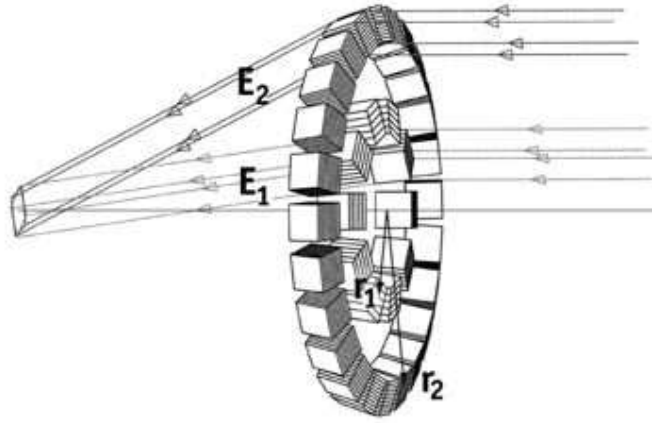


FIGURE 1.10 – Principe de fonctionnement de la lentille de Laue. Le faisceau  $\gamma$ , provenant de l'infini, est déviée par diffraction de Bragg vers un unique point focal.

### 1.5 Principe de fonctionnement d'une lentille de Laue

La lentille de Laue se base sur la capacité des cristaux à diffracter les photons, pour concentrer les rayons  $\gamma$  en un seul point focal. Pour cela, la lentille utilise un grand nombre de cristaux disposés sur des anneaux concentriques ou en spirale. Chaque cristal est alors orienté afin de diffracter une partie du faisceau incident vers le détecteur (Fig. 1.10).

L'angle de déviation des photons  $\gamma$  est alors égal à  $2\theta_B$  (Fig. 1.11), où  $\theta_B$ <sup>1</sup> est l'angle d'incidence sur les plans cristallins (angle de Bragg), définie par la relation de Bragg :

$$2d_{hkl}\sin\theta_B = n\lambda \quad (1.3)$$

avec  $d_{hkl}$  la distance entre les plans cristallins diffractant,  $n$  l'ordre de diffraction et  $\lambda$  la longueur d'onde diffractée.

Ainsi, selon l'équation 1.3, l'angle de déviation diminue avec l'augmentation de l'énergie. Les basses énergies sont donc diffractées par les anneaux externes, et inversement.

Il est également possible d'exprimer l'angle de déviation en fonction de la focale de la lentille  $F$  et du rayon de l'anneau  $R_i$  :

$$\tan 2\theta_{B,i} = \frac{R_i}{F} \Rightarrow \theta_{B,i} \approx \frac{R_i}{2F} \quad (1.4)$$

L'approximation utilisée dans l'expression de droite est valable pour les énergies supérieures à 100 keV, pour lesquelles les angles de déviations sont très faibles, inférieurs à 2 degrés. Ces faibles angles impliquent ainsi d'utiliser de longues distances focales, généralement de plusieurs dizaines de mètres.

Pour une distance focale donnée, la limite basse en énergie, utilisable par une lentille de Laue, dépend alors de son rayon maximum autorisé. Au contraire, la

1. La diffraction dans les cristaux est détaillée dans le chapitre suivant.



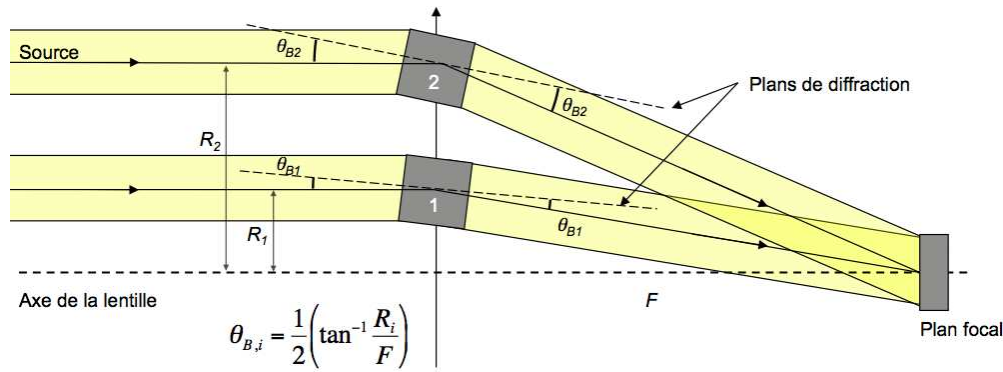


FIGURE 1.11 – Principe de fonctionnement de la lentille de Laue. Si les cristaux sont bien orientés, les faisceaux diffractés convergent vers un unique point focal. Dans le cas d’une source ponctuelle et monochromatique, la tache focale est au moins de la taille d’un cristal.

limite supérieure en énergie est limitée par la diminution de la surface géométrique au centre de la lentille. De manière générale, on considère qu’une lentille de Laue peut être utilisée entre environ 100 keV et 2 MeV pour une distance focale d’environ 100 m.

La Figure 1.11 montre le fonctionnement de la lentille qui se comporte comme un concentrateur, dont la tache focale dépend directement de la taille des cristaux. Ainsi, pour mieux concentrer le signal sur le plan de détection, et obtenir une meilleure sensibilité, il est préférable d’utiliser les plus petits cristaux possibles. En pratique, cette règle est contrebalancée par la forte augmentation du nombre de pièces, et de la complexité, avec la réduction de la taille des cristaux.

## 1.5.1 Géométrie de la lentille

Les cristaux diffractant peuvent être disposés sur la lentille, en anneaux concentriques ou bien en spirale. Afin de permettre une conception modulaire et simple de la lentille (Chapitre 5), nous avons choisi de privilégier une géométrie à base d’anneaux concentriques. Contrairement à la spirale, les anneaux fournissent une distribution de cristaux, et d’énergies diffractées, discontinue le long du rayon de la lentille.

**Lentille à bande passante large** Pour pouvoir couvrir une large bande spectrale avec des anneaux concentriques (constitués des mêmes cristaux), il est nécessaire que chacun des anneaux diffracte une portion du spectre, suffisamment large, pour que leurs contributions se recouvrent et créent une bande passante continue<sup>2</sup>. Pour un angle d’incidence donné, la relation de Bragg (Equation 1.3) n’associe qu’une seule énergie diffractée. Pour que chaque cristal diffracte une bande passante, ils doivent disposer, dans leur volume, d’une distribution d’orientation de leur plans cristallins.

2. Les spécifications recherchées pour les cristaux sont détaillées dans le chapitre 4

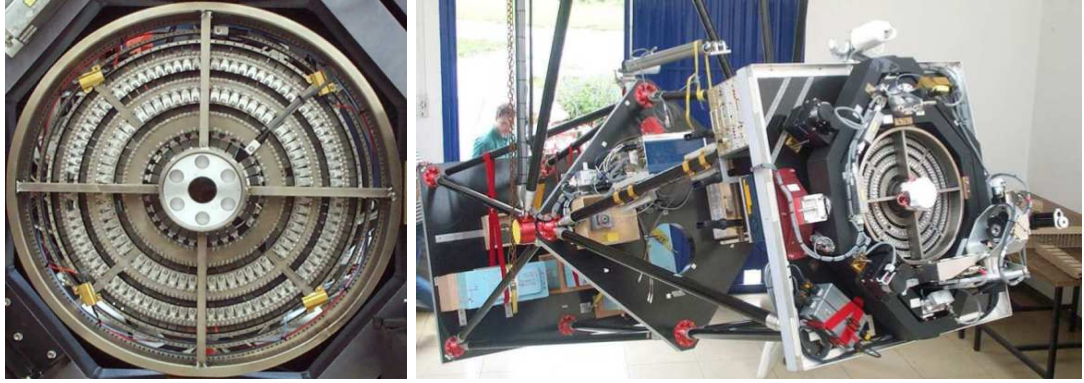


FIGURE 1.12 – A gauche : Photographie de la lentille CLAIRE. Pour gagner en compacité, les cristaux sont successivement collés sur les deux faces de la lentille, d'un anneau à l'autre. A droite : CLAIRE sur sa nacelle ballon.

Ceci peut être obtenu par deux techniques principales étudiées dans le chapitre suivant, les cristaux mosaïques et ceux à plans courbes.

**Lentille à bande passante étroite** Dans le cas où l'on souhaite utiliser une bande passante étroite, centrée sur une unique énergie, la largeur de la bande est donnée par la moyenne de celle des anneaux. De plus, tous les anneaux doivent satisfaire la condition :

$$d_{hkl} \sin \theta_B = \text{constante} \quad (1.5)$$

Toute la difficulté est alors d'utiliser des matériaux ou des plans diffractant différents d'un anneau à l'autre, respectant cette condition.

### 1.5.2 Bref historique du développement de la lentille de Laue

La première lentille de Laue, à vocation astrophysique, a été réalisée par un étudiant (Lindquist and Webber, 1968) à l'Université du Minnesota. Elle était composée de 4000 cristaux de sel (NaCl), de 25x20 mm, répartis sur 32 anneaux concentriques. Elle était conçue pour focaliser les rayonnements dans la bande 20-140 keV et vola sous ballon stratosphérique en 1968. Elle réussit à détecter avec certitude la nébuleuse du Crabe (Lindquist, 1971).

La lentille CLAIRE a été développée entre 1995 et 2003 sous la direction de von Ballmoos et al (2004a). Elle comportait 556 cristaux de germanium de 10x10 mm et 7x10 mm, répartis sur 8 anneaux concentriques (Fig. 1.12). Elle était optimisée pour diffracter une bande étroite autour de 170 keV avec une focale de 2,76 m. La lentille vola deux fois sous ballon stratosphérique dans le sud de la France avec un détecteur de HPGe. Le deuxième vol, en 2001, permit de détecter la nébuleuse du Crabe, malgré un problème de pointage de la nacelle (Halloin et al, 2004).

Ces deux premières lentilles ont permis de valider le concept, et de démontrer la faisabilité technique de la lentille de Laue. CLAIRE est également à l'origine de

nombreuses avancées dans le domaine de la fabrication des cristaux mosaïques, mais aussi dans le domaine de la fixation et de l'orientation des cristaux sur la lentille.

L'étape suivante fut le développement d'une lentille spatialisée, la seule méthode permettant d'utiliser de grandes focales et de long temps de pause. Les projets d'observatoires MAX (von Ballmoos et al, 2004b) puis GRI (Knödlseider et al, 2009), même s'ils n'ont pas abouti, ont fait entrer la lentille de Laue dans l'ère spatiale, en développant des instruments plus ambitieux. Ils ont permis entre autre le développement de nouveaux types de cristaux, plus performants, à base de cuivre et de silicium courbe.

Le travail présenté dans cette thèse est la suite logique des 15 ans de développement dont a bénéficié la lentille de Laue au CERN. L'objectif était de valider et d'assembler toutes les briques technologiques nécessaires à la conception d'une lentille spatialisée. Ce travail est passé, entre autres, par la recherche de nouveaux cristaux aux performances accrues, par l'étude de la fabrication de cristaux à grande échelle et par la conception et la réalisation d'un prototype répondant aux exigences du domaine spatial.

# 2

## Diffraction dans les cristaux

Ce chapitre vise à introduire les différents modèles de diffraction dans les cristaux, afin de pouvoir modéliser les performances d'une lentille de Laue complète ou d'un simple cristal.

La théorie cinématique de la diffraction est tout d'abord décrite puis utilisée au sein du modèle des cristaux mosaïques. La théorie dynamique, plus complexe, est ensuite rapidement exposée afin de comprendre la diffraction dans les cristaux courbes, qui seront également étudiés au cours de cette thèse. Seul les résultats qui nous seront utiles sont exposés dans ce chapitre, et j'encourage le lecteur souhaitant plus de détails à se tourner vers les ouvrages de références tels que Zachariasen (1945) et Authier (2001) dont ce chapitre s'inspire.

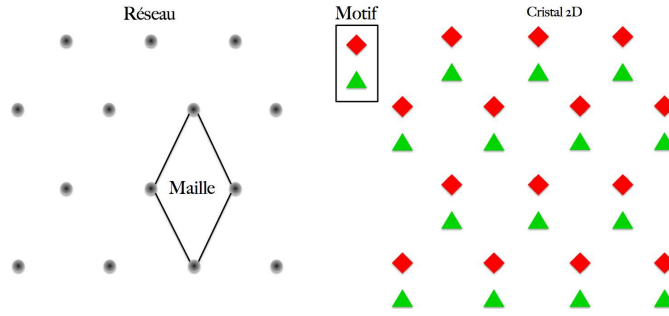


FIGURE 2.1 – Le cristal est composé par la répétition d’un motif le long des noeuds d’un réseau. Ce réseau peut entièrement être reproduit par translation de la maille primitive.

## 2.1 Notions utiles de cristallographie

Des termes et des concepts de cristallographie seront abondamment utilisés tout au long de ce chapitre et dans le reste de la thèse. Ces notions vont ainsi être introduites dans les paragraphes qui suivent.

### 2.1.1 Définition d’un cristal

Un cristal est défini comme un matériau solide constitué d’un arrangement périodique et ordonné d’atomes, de molécules ou d’ions, formant un réseau selon les trois dimensions spatiales. La structure des cristaux s’oppose ainsi à celles, désordonnée, des solides amorphes ou vitreux tel-que le verre.

Les cristaux n’ont cessé d’être définis par la forme géométrique de leurs faces externes qu’à partir des travaux de Haüy (1784) et Bravais (1866). Les cristaux sont maintenant caractérisés par la nature et la forme de l’agencement interne de leur réseau, indépendamment des faces externes.

### 2.1.2 Réseau cristallin

#### Maille primitive

Le cristal est composé par la répétition d’un motif sur les noeuds d’un réseau (Figure 2.1). La maille primitive est composée des trois plus petits vecteurs  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$ ,  $\vec{c}$  pouvant reproduire l’ensemble du réseau par la translation  $H\vec{a} + K\vec{b} + L\vec{c}$  où  $H$ ,  $K$ ,  $L$  sont des entiers quelconques. La maille primitive ne contient ainsi qu’un noeud à ses sommets et aucun au centre ou sur les faces. Toutefois, le choix de la maille n’est pas unique et par commodité certaines mailles non primitives, contenant plus de noeuds, sont parfois utilisées pour représenter les cristaux tel-que la structure cubique centrée (Tableau 2.1).

Si  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  et  $\vec{c}$  définissent la base de la maille cristalline, son volume est  $V_m = \vec{a} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{c})$ .

### Réseaux de Bravais

La nature périodique des cristaux induit des symétries par rotation et translation selon lesquelles le cristal reste inchangé. On peut ainsi classer les cristaux tridimensionnels selon 14 types de réseaux possédant chacun un groupe de symétrie. Ceux-ci, appelés réseaux de Bravais, du nom de l'un des découvreurs (Bravais, 1866) sont classés en sept catégories, selon la forme de la maille (Tableau 2.1).

| Types de maille | Paramètres de la maille   | Nombre de réseaux |
|-----------------|---|-------------------|
| Triclinique     | $a \neq b \neq c$<br>$\alpha \neq \beta \neq \gamma$              | 1 (P)             |
| Monoclinique    | $a \neq b \neq c$<br>$\alpha = \beta = 90^\circ \neq \gamma$      | 2 (P, C)          |
| Orthorombique   | $a \neq b \neq c$<br>$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$         | 4 (P, C, I, F)    |
| Rhomboédrique   | $a = b = c$<br>$\alpha = \beta = \gamma \neq 90^\circ$            | 1 (P)             |
| Hexagonal       | $a = b \neq c$<br>$\alpha = \beta = 90^\circ; \gamma = 120^\circ$ | 1 (P)             |
| Tétragonal      | $a = b \neq c$<br>$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$            | 2 (P, I)          |
| Cubique         | $a = b = c$<br>$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$               | 3 (P, I, F)       |

TABLE 2.1 – Réseaux de Bravais classés par type de maille.  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  représentent respectivement les angles entre  $\vec{b}$  et  $\vec{c}$ ,  $\vec{a}$  et  $\vec{c}$  et entre  $\vec{a}$  et  $\vec{b}$ .

On peut voir dans le Tableau 2.1 que chaque type de maille est constitué de différents réseaux réunis par groupe de symétrie, présentés ci-dessous ;

- Primitif (P) : La maille ne contient des noeuds qu'à ses sommets.
- Base centrée (C) : La maille possède un noeud en plus au centre d'une de ses faces.
- Centrée (I) : La maille possède un noeud en plus en son centre.
- Faces centrées (F) : La maille possède des noeuds en plus au centre de chaque face.

### 2.1.3 Plans réticulaires

La distribution périodique des noeuds dans les trois dimensions spatiales provoque l'apparition d'alignements de noeuds sur des plans parallèles et équidistants. Ces plans réticulaires sont caractérisés par leurs intersections avec les vecteurs de base de la maille  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$ ,  $\vec{c}$ . Le plan le plus proche de l'origine (mais ne passant pas par l'origine) coupe les trois axes aux coordonnées  $(\frac{\vec{a}}{h}, \frac{\vec{b}}{k}, \frac{\vec{c}}{l})$  (Figure 2.2) avec  $h$ ,  $k$ ,  $l$  entiers. Lorsque  $h$ ,  $k$  ou  $l$  est égale à zéro, alors le plan est parallèle à l'axe associé.

La notation  $(hkl)$ , appelée indice de Miller, définit une série de plans réticulaires, tandis que la notation  $[hkl]$  représente la direction orthogonale aux plans.

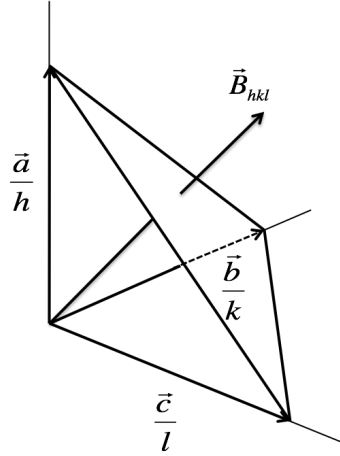


FIGURE 2.2 – Plan réticulaire caractérisé par ces intersections avec la base de la maille  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$ ,  $\vec{c}$ , aux coordonnées  $(\frac{\vec{a}}{h}, \frac{\vec{b}}{k}, \frac{\vec{c}}{l})$ .  $\vec{B}_{hkl}$  représente le vecteur réciproque, orthogonal au plan (hkl).

Sur la Figure 2.2, le vecteur  $\vec{B}_{hkl}$  est appelé vecteur réciproque, selon la direction [hkl] orthogonale aux plans réticulaires (hkl). Ce vecteur est défini comme :

$$\vec{B}_{hkl} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^* \quad (2.1)$$

Où  $\vec{a}^*$ ,  $\vec{b}^*$ ,  $\vec{c}^*$ , les vecteurs réciproques de  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$ ,  $\vec{c}$ , sont définis comme :

$$\vec{a}^* = \frac{\vec{b} \wedge \vec{c}}{V_m}, \quad \vec{b}^* = \frac{\vec{c} \wedge \vec{a}}{V_m}, \quad \vec{c}^* = \frac{\vec{a} \wedge \vec{b}}{V_m} \quad (2.2)$$

Les trois vecteurs  $\vec{a}^*$ ,  $\vec{b}^*$  et  $\vec{c}^*$  forment par translation le réseau réciproque, dont chaque noeud correspond à une séquence de plans réticulaires dans le réseau initial.

Dans la cas des mailles cubiques, utilisées dans cette thèse, la distance entre deux plans successifs, appelée distance interréticulaire  $d_{hkl}$  peut être calculée en projetant  $\frac{\vec{a}}{h}$  sur  $\vec{B}_{hkl}$  :

$$d_{hkl} = \frac{\vec{a}}{h} \cdot \frac{\vec{B}_{hkl}}{|\vec{B}_{hkl}|} = \frac{1}{|\vec{B}_{hkl}|} \quad (2.3)$$

La distance interréticulaire d'une maille cubique se simplifie en :

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (2.4)$$

## 2.2 Diffraction dans un cristal idéal

### 2.2.1 Partie géométrique de la diffraction

La partie géométrique de la diffraction, concernant la direction du maximum de diffraction, est relativement simple à appréhender comparée au calcul de l'intensité

du faisceau diffracté, nécessitant des connaissances théoriques plus poussées. C'est pourquoi, la partie purement géométrique est exposée dans un premier temps, au sein des paragraphes qui suivent.

### Equations de Laue

Lorsque le cristal est soumis à une onde plane monochromatique, celle-ci est diffusée par chaque élément du réseau. Comme celui-ci est périodique, le maximum de diffraction se produit lorsque la différence de chemin optique est égale à un nombre entier de fois la longueur d'onde du faisceau incident (Figure 2.3).

Ainsi, pour obtenir le maximum de diffraction l'onde incidente doit satisfaire simultanément les trois équations de Laue :

$$\begin{aligned}\vec{a} \cdot (\vec{k}_{HKL} - \vec{k}_0) &= H \\ \vec{b} \cdot (\vec{k}_{HKL} - \vec{k}_0) &= K \\ \vec{c} \cdot (\vec{k}_{HKL} - \vec{k}_0) &= L\end{aligned}\tag{2.5}$$

où  $\vec{k}_0$  et  $\vec{k}_{HKL}$  sont respectivement les vecteurs d'onde des faisceaux incident et diffracté, et  $n$  un entier quelconque. Ces équations peuvent se résumer sous une forme plus compact :

$$\vec{k}_{HKL} - \vec{k}_0 = \vec{B}_{HKL}\tag{2.6}$$

où  $\vec{B}_{HKL} = H\vec{a}^* + K\vec{b}^* + L\vec{c}^*$  et  $(HKL) = n(hkl)$  avec  $n$  un entier quelconque.

### Equation de Bragg

La diffraction dans un cristal est ainsi créé par une interférence constructive des diffusions cohérentes sur les noeuds du réseau. En simplifiant à l'extrême, la diffraction peut être interprétée comme une réflexion sur une famille de plans réticulaires. Cependant, le maximum de diffraction n'intervient que pour une valeur précise de l'angle d'incidence sur les plans. Cette valeur peut être calculée à partir des équations 2.3 et 2.6, menant à la relation de Bragg :

$$|\vec{B}_{HKL}| = \frac{1}{d_{HKL}} = \frac{2 \sin\theta_B}{\lambda}\tag{2.7}$$

où  $\theta_B$  est l'angle de Bragg, la valeur de l'angle d'incidence permettant le maximum de diffraction du faisceau de longueur d'onde  $\lambda$ .

La relation de Bragg peut également s'écrire de manière à faire apparaître l'ordre de diffraction  $n$ , avec  $n(hkl) = (HKL)$  :

$$2 d_{hkl} \sin\theta_B = n \lambda\tag{2.8}$$



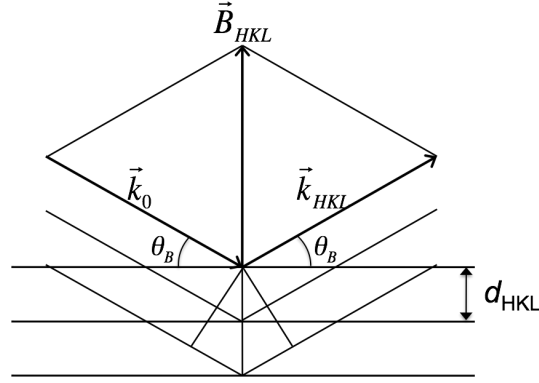


FIGURE 2.3 –  $\vec{k}_0$  et  $\vec{k}_{HKL}$  sont respectivement les vecteurs d'onde des faisceaux incident et diffracté.  $\theta_B$  est l'angle d'incidence et  $d_{HKL}$  la distance interréticulaire.

### Sphère d'Ewald

D'après l'équation 2.6, le maximum de diffraction apparaît lorsque la différence entre les vecteurs d'onde des faisceaux diffracté et incident ( $\vec{k}_{HKL} - \vec{k}_0$ ) est égale au vecteur réciproque ( $\vec{B}_{HKL}$ ) d'une famille de plans réticulaires.

Il est ainsi possible de visualiser les conditions de diffraction en réunissant sur un seul schéma le réseau réciproque et les vecteurs d'onde. Puisque  $|\vec{k}_0| = |\vec{k}_{HKL}| = 1/\lambda$ , ces deux vecteurs d'onde peuvent être représentés comme les rayons d'une sphère de centre  $P$  et de rayon  $1/\lambda$  (Figure 2.4). Le maximum de diffraction n'est atteint que lorsque cette sphère, appelée sphère de diffraction ou sphère d'Ewald, coupe un noeud du réseau réciproque. Pour que cette condition soit satisfaite, il est possible de déplacer le réseau réciproque (en faisant tourner le cristal) ou faire varier le rayon de la sphère d'Ewald en changeant l'énergie du faisceau incident.

### Faces externes du cristal

Jusqu'à présent, les bords externes du cristal ont été négligés en considérant des plans réticulaires infinis. La limite physique du cristal induit l'existence de deux géométries de diffraction différentes (Figure 2.5). Dans la géométrie de Bragg, le faisceau est diffracté sur les plans quasi-parallèles à la face d'entrée du cristal. Le faisceau diffracté sort alors du cristal par la même face. Toutefois au cours de cette thèse, nous nous intéresserons exclusivement à la géométrie de Laue, dans laquelle le faisceau est diffracté par les plans quasi-perpendiculaires à la face d'entrée du cristal. Le faisceau diffracté émerge alors du cristal par la face opposée. Cette géométrie de diffraction permet d'utiliser des cristaux plus courts, pour diffracter une même section de faisceau.

Les faces externes du cristal sont obtenues directement lors de sa croissance ou après découpe. Dans les deux cas, celles-ci sont rarement parfaitement alignées avec les plans réticulaires. Il apparaît alors un angle d'asymétrie (noté  $\alpha$  dans la Figure 2.5) entre la surface d'entrée du faisceau et les plans diffractant.

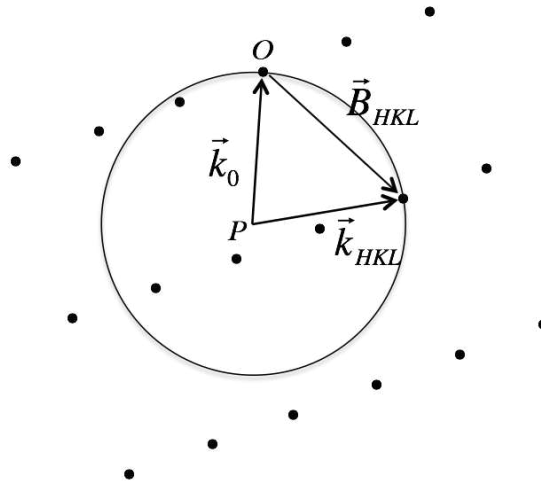


FIGURE 2.4 – Représentation en deux dimensions de la sphère d'Ewald. Cette représentation permet de visualiser les conditions nécessaires pour obtenir le maximum de diffraction, en superposant le vecteur d'onde du faisceau incident et le réseau réciproque.

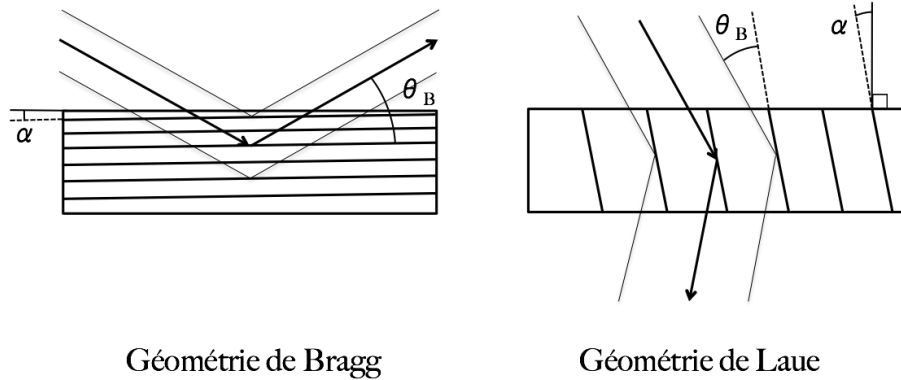


FIGURE 2.5 – Représentations schématiques des diffractions en géométrie de Bragg (à gauche) et de Laue (à droite). Les angles  $\theta_B$  et  $\alpha$  sont respectivement l'angle de Bragg et l'angle d'asymétrie.

### 2.2.2 Diffusion par un électron et par un atome

Les considérations purement géométriques des paragraphes précédant ne suffisent pas pour déterminer la distribution de l'intensité diffractée par un cristal. Il est nécessaire pour cela de comprendre les diffusions Thomson sur les atomes de la maille et leur interférences au sein du réseau cristallin.

#### Diffusion par un électron

Soit un électron libre au repos, de masse  $m$ , soumis à une onde plane et monochromatique de vecteur champ électrique  $\vec{E}_0 e^{2\pi i(\nu_0 t - \vec{k}_0 \cdot \vec{r})}$ . Ce champ électrique induit sur l'électron une force et une oscillation selon l'axe de polarisation de l'onde incidente :

$$\begin{aligned}\vec{F} &= -e\vec{E}_0 e^{2\pi i\nu_0 t} = m \frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} \\ \vec{x} &= \frac{e}{m(2\pi\nu_0)^2} \vec{E}_0 e^{2\pi i\nu_0 t}\end{aligned}\tag{2.9}$$

Il se crée alors un dipôle électrique :

$$-e\vec{x} = \vec{p}_e e^{2\pi i\nu_0 t}\tag{2.10}$$

L'électron ainsi accéléré produit une onde électromagnétique sphérique :

$$\vec{E}_e e^{2\pi i\nu_0 t} = (\vec{u} \wedge \vec{p}_e) \wedge \vec{u} \frac{(2\pi\nu_0)^2}{c^2 R} e^{2\pi i(\nu_0 t - \vec{k} \cdot \vec{R})}\tag{2.11}$$

avec :

- $\vec{p}_e = -\frac{e^2}{m(2\pi\nu_0)^2} \vec{E}_0$  issu du dipôle électrique  $-e\vec{x}$ .
- $\vec{R} = R\vec{u}$  le vecteur reliant le dipôle électrique et le point d'observation.

Si le point d'observation est suffisamment éloigné du dipôle pour considérer l'onde diffusée par l'électron comme plane, alors l'intensité de cette onde s'écrit :

$$I_e = I_0 \left( \frac{e^2 \sin\varphi}{mc^2 R} \right)^2 = I_0 \left( \frac{r_e \sin\varphi}{R} \right)^2\tag{2.12}$$

avec :

- $\varphi$  est l'angle entre la direction des oscillations de l'électron (selon  $\vec{E}_0$ ) et la direction du point d'observation ( $\vec{u}$ ).
- $r_e = \frac{e^2}{mc^2}$  le rayon classique de l'électron.

Ainsi l'intensité diffusée par l'électron est inversement proportionnelle au carré de sa masse, mais indépendante de l'énergie du faisceau X incident.

L'angle  $\varphi$  ne peut être déterminé que si l'onde incidente est polarisée. Dans le cas contraire, le terme  $\sin^2\varphi$  doit être remplacé par sa valeur moyenne  $\frac{1+\cos^2 2\phi}{2}$ , où  $2\phi$  est l'angle de diffusion entre la direction d'incidence et la direction de diffusion.

Dans le cadre de la diffusion cohérente de rayonnement hautes énergies (X- $\gamma$ ) les angles de déviations sont suffisamment faibles pour que la polarisation du faisceau incident ne soit pas modifiée et n'affecte pas l'intensité du faisceau diffusé.

### Diffusion par un atome

Nous nous intéressons maintenant à la diffusion par un atome, situé à l'origine, et dont les  $Z$  électrons sont considérés libres aux positions moyennes  $\vec{r}_j$ ,  $j \in [1, Z]$ .

A partir de l'équation 2.9 et en négligeant les interactions entre électrons, le déplacement et le dipôle électrique du  $j^{eme}$  électron valent :

$$\begin{aligned} \vec{x}_j &= \frac{e^2}{m(2\pi\nu_0)^2} \vec{E}_0 e^{2\pi i(\nu_0 t - \vec{k}_0 \cdot \vec{r}_j)} \\ -e\vec{x}_j &= \vec{p}_j e^{2\pi i\nu_0 t}, \quad \vec{p}_j = \vec{p}_e e^{2\pi i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}_j} \end{aligned} \quad (2.13)$$

Si l'on se place au point  $\vec{R}$  suffisamment éloigné de l'atome pour que l'onde diffusée soit assimilée à une onde plane, alors le champ électrique de cette onde peut s'exprimer comme la somme des contributions de chaque électron, définie Equation 2.11 :

$$\vec{E}_a e^{2\pi i\nu_0 t} = \sum_{j=1}^Z (\vec{u}_j \wedge \vec{p}_j) \wedge \vec{u}_j \frac{(2\pi\nu_0)^2}{c^2(\vec{R} - \vec{r}_j)} e^{2\pi i(\nu_0 t - \vec{k}_j \cdot (\vec{R} - \vec{r}_j))} \quad (2.14)$$

Cette expression peut être simplifiée en remarquant que  $r_j \ll R$  et  $\vec{k}_j = \vec{k} \forall j$  :

$$\vec{E}_a = \vec{E}_e \sum_{j=1}^Z e^{2\pi i(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}_j} \quad (2.15)$$

Il est alors possible de calculer l'intensité totale diffusée par l'atome, de la même manière que pour l'expression 2.12 :

$$\begin{aligned} I_a &= I_{coh} + I_{inc} = I_e \left| \sum_{j=1}^Z e^{2\pi i(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}_j} \right|^2 \\ &= I_e \left( Z + \sum_{j \neq k} e^{2\pi i(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot (\vec{r}_j - \vec{r}_k)} \right) \end{aligned} \quad (2.16)$$

où  $I_{coh}$  et  $I_{inc}$  sont respectivement les intensités de la diffusion cohérente et incohérente (ou diffusion Compton). Due à son incohérence, l'intensité totale de la diffusion Compton dans un cristal est la somme de la diffusion Compton de chaque atome le composant, sans tenir compte de l'arrangement cristallin. Cette partie de l'intensité diffusée n'a donc aucun rôle dans la diffraction et ne sera pas utilisée dans la suite de cette thèse.

Afin de pouvoir calculer l'intensité de la diffusion cohérente pour l'ensemble de l'atome, il est nécessaire d'introduire  $\sigma_j dv$ , la probabilité pour que l'électron  $j$  se trouve dans le volume  $dv$ . Cette probabilité est rendue nécessaire par la rapidité de déplacement des électrons, très grande devant le temps d'observation.

Il est ainsi possible de calculer le facteur de diffusion de l'électron  $j$  :

$$\Phi_j = \iiint_V \sigma_j e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\vec{r}_j} dv \quad (2.17)$$

et l'intensité de la diffusion cohérente de l'atome :

$$\begin{aligned} I_{coh} &= I_e \left| \sum_{j=1}^Z \Phi_j \right|^2 \\ &= I_e f^2 \end{aligned} \quad (2.18)$$

L'amplitude de la diffusion cohérente d'un atome peut alors être exprimée en fonction de celle d'un électron libre ( $I_e = E_e^2 \frac{c}{8\pi}$ ) :

$$E_{coh} = E_e f \quad (2.19)$$

où  $f$  est le facteur de diffusion de l'atome, dépendant de sa densité électronique. Il peut être calculé à partir des indices  $a$ ,  $b$  et  $c$  des tables de l'*International Tables for Crystallography* (Prince, 2004) :

$$f = c + \sum_{i=1}^4 a_i e^{-b_i \left( \frac{\sin \theta_B}{\lambda_0} \right)^2} \quad (2.20)$$

où  $\theta_B$  et  $\lambda$  sont respectivement l'angle d'incidence du faisceau et sa longueur d'onde.

### 2.2.3 Diffraction par une maille cristalline

Nous allons maintenant passer à la diffusion d'une maille cristalline dont les  $n$  atomes sont situés aux positions  $\vec{r}_i = u_i \vec{a} + v_i \vec{b} + w_i \vec{c}$ , où  $(u, v, w) \in [0, 1]$  et  $i \in [1, n]$ .

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, le ratio de l'amplitude de la diffusion cohérente d'un atome sur celle d'un électron vaut  $f$ , le facteur de diffusion atomique. De la même manière, on peut exprimer la diffusion cohérente de la maille cristalline comme  $E_e F$ , où  $F$  est le facteur de diffusion de la maille, plus couramment désigné comme le facteur de structure.

Afin de calculer ce facteur de structure, il est nécessaire d'introduire la densité électronique au sein de la maille  $\rho(\vec{r})$ , avec  $\rho dv$  le nombre d'électrons contenus dans le volume  $dv$  autour de  $\vec{r}$ . Il est alors possible de considérer la densité électronique de la maille comme la superposition des densités électroniques des atomes  $\rho$ , tel que  $\rho = \sum_{j=1}^Z \sigma_j$ .

$$\Omega(\vec{r}) = \sum_{k=1}^n \rho_k(\vec{r} - \vec{r}_k) \quad (2.21)$$

La contribution du volume  $dv$  à l'amplitude de diffusion cohérente de la maille s'exprime par  $E_e e^{i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\vec{r}} \Omega dv$ . Le facteur de structure de la maille cristalline devient alors :

$$F = \iiint_V \Omega e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\vec{r}} dV \quad (2.22)$$

où  $V$  est le volume de la maille.

En combinant les équations 2.21 et 2.22, on trouve :

$$F = \sum_{k=1}^n f_k e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\vec{r}_k} \quad (2.23)$$

On obtient alors pour l'intensité totale de la diffusion cohérente d'une maille :

$$I_{maille} = I_e \left| \sum_{k=1}^n f_k e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\vec{r}_k} \right|^2 \quad (2.24)$$

Nous avons vu dans la partie 2.2.1 que le maximum de diffraction est obtenu lorsque  $|\vec{B}_{HKL}| = |\vec{k}_{HKL} - \vec{k}_0|$  correspond à un noeud du réseau réciproque.

Pour rappel :

$$\begin{aligned} \vec{B}_{hkl} \cdot \vec{a} &= h \\ \vec{B}_{hkl} \cdot \vec{b} &= k \\ \vec{B}_{hkl} \cdot \vec{c} &= l \end{aligned} \quad (2.25)$$

où  $h, k, l \in [0, 1]$  et  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$  la base de la maille cristalline.

Ainsi, dans les conditions du maximum de diffraction, le facteur de structure peut s'exprimer comme :

$$F = \sum_{k=1}^n f_k e^{2\pi i(u_k h + v_k k + w_k l)} \quad (2.26)$$

où  $(u_k, v_k, w_k)$  sont les coordonnées de l'atome  $k$  dans la maille primitive.

### Facteur géométrique

Dans le cadre spécifique de notre étude, tous les atomes de la maille sont identiques. Le facteur de diffusion atomique peut donc être extrait de la somme de l'expression 2.24, tandis que le reste de la somme ;  $\sum e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\vec{r}_k}$ , appelé facteur géométrique, ne dépend que de l'agencement des atomes dans la maille.

A partir de l'expression 2.26, il est facile de calculer le facteur géométrique dans le cas des mailles cubiques faces centrées (cfc) et diamants, rencontrées dans cette thèse. Les quatre atomes de la maille primitive cfc sont situés aux coordonnées  $(0,0,0)$ ,  $(0,1/2,1/2)$ ,  $(1/2,0,1/2)$  et  $(1/2,1/2,0)$ . Le facteur géométrique  $G_{cfc}$  vaut alors :

$$\begin{aligned} G_{cfc} &= 1 + \cos\pi(h+k) + \cos\pi(h+l) + \cos\pi(k+l) \\ &= \begin{cases} 4 & \text{si } h, k, l \text{ de même parité} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \end{aligned} \quad (2.27)$$

## CHAPITRE 2. DIFFRACTION DANS LES CRISTAUX

La maille diamant, peut-être vue comme un assemblage de deux mailles cfc décalées de  $(1/4, 1/4, 1/4)$ . Le facteur géométrique s'écrit alors :

$$G_{diamant} = G_{cfc}(1 + e^{\frac{\pi}{2}i(h+k+l)})$$

$$= \begin{cases} 4(1 - e^{i\frac{\pi}{2}}) & \text{si } h, k, l \text{ impairs} \\ 8 & \text{si } h, k, l \text{ pairs et } h + k + l = 0 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.28)$$

### Effet de l'agitation thermique

Nous avons introduit dans les paragraphes précédents la notion de facteur de structure dont le rôle est de moduler l'intensité diffractée selon l'agencement des atomes dans la maille. Cependant, le facteur calculé en 2.26 ne prend pas en compte les oscillations des atomes autour de leur position au noeud du réseau. L'impact de ces oscillations sur l'intensité diffractée, provenant de l'agitation thermique, nécessite l'introduction d'un terme correctif appelé facteur de Debye-Waller.

Si les  $n$  atomes de la maille, situés à la position  $\vec{r}$ , sont animés d'un mouvement indépendant  $\Delta\vec{r}(t)$  autour de leur position d'équilibre tel que leur moyenne soit nulle ( $\langle\Delta\vec{r}(t)\rangle = 0$ ), l'expression du facteur de structure peut être corrigée :

$$F = \sum_{k=1}^n f_k e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\vec{r}_k} \langle e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\Delta\vec{r}(t)} \rangle \quad (2.29)$$

En faisant l'hypothèse que l'amplitude des oscillations des atomes est faible comparée à la longueur d'onde du faisceau incident, on peut développer le dernier terme comme une série :

$$\langle e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\Delta\vec{r}(t)} \rangle \approx 1 + 2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0) \cdot \langle\Delta\vec{r}(t)\rangle - \frac{4\pi^2}{2} \langle |(\vec{k}-\vec{k}_0) \cdot \Delta\vec{r}(t)|^2 \rangle \quad (2.30)$$

dont le deuxième terme est nul comme indiqué plus haut ( $\langle\Delta\vec{r}(t)\rangle = 0$ ).

Le dernier terme de cette série peut facilement être calculé à l'aide des équations 2.6 et 2.3 :

$$\begin{aligned} \langle |(\vec{k}-\vec{k}_0) \cdot \Delta\vec{r}(t)|^2 \rangle &= \frac{|\vec{k}-\vec{k}_0|^2 |\Delta\vec{r}|^2}{3} \\ &= \frac{4\sin^2\theta_B |\Delta\vec{r}|^2}{3\lambda_0^2} \end{aligned} \quad (2.31)$$

On obtient alors :

$$\langle e^{2\pi i(\vec{k}-\vec{k}_0)\cdot\Delta\vec{r}(t)} \rangle \approx 1 - \frac{8\pi^2 \sin^2\theta_B |\Delta\vec{r}|^2}{3\lambda_0^2} \approx e^{-\frac{8\pi^2}{3\lambda_0^2} \sin^2\theta |\Delta\vec{r}|^2} \quad (2.32)$$

L'amplitude des oscillations  $\Delta r$  des atomes a été évaluée par Guinier (1956) :

$$|\Delta \vec{r}|^2 \approx \frac{9h^2 \mathcal{N}_a}{4\pi^2 M_a k_B \Theta} \left( \frac{T}{\Theta} + \frac{e^{4\frac{T}{\Theta}}}{4} \right) \quad (2.33)$$

avec  $h$  la constante de Planck,  $\mathcal{N}_a$  le nombre d'Avogadro,  $M_a$  la masse molaire,  $k_B$  la constante de Boltzman,  $\Theta$  la température de Debye et  $T$  la température du cristal.

En tenant compte de l'agitation thermique des  $n$  atomes de la maille, le facteur de structure se met sous la forme :

$$F = \sum_{k=1}^n \sqrt{D_k} f_k e^{2\pi i (\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}_k} \quad (2.34)$$

avec  $D$  le facteur de Debye-Waller :

$$D = e^{-\frac{16\pi^2}{3\lambda_0^2} \sin^2 \theta |\Delta \vec{r}|^2} \quad (2.35)$$

### 2.2.4 Théorie cinématique

Après avoir calculé l'intensité du faisceau diffusé par un électron, un atome puis une maille, il est maintenant possible de déterminer l'intensité diffractée par un cristal. Celui-ci est constitué de  $N$  mailles alignées périodiquement, avec  $N = N_1 N_2 N_3$ ,  $N_1, N_2, N_3$  étant le nombre de mailles selon les trois axes  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ . Ainsi, la position d'une maille dans le cristal est repérée par  $\vec{M} = p\vec{a} + q\vec{b} + r\vec{c}$  avec  $p \in [0, N_1 - 1]$ ,  $q \in [0, N_2 - 1]$ ,  $r \in [0, N_3 - 1]$ .

Si l'on part du principe que le champ électrique diffusé par le cristal est la somme des contributions de chaque maille, celui-ci devient :

$$E_{cristal} = E_e F \sum_{p=0}^{N_1-1} \sum_{q=0}^{N_2-1} \sum_{r=0}^{N_3-1} e^{2\pi i (\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{M}_{pqr}} \quad (2.36)$$

où  $(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{M}_{pqr}$  représente la différence de phase entre le faisceau diffusé par la maille située à l'origine et celui diffusé à la position  $\vec{M}_{pqr}$ .

De même, l'intensité diffusée par le cristal vaut :

$$\begin{aligned} I_{cristal} &= I_e F^2 \left| \sum_{p=0}^{N_1-1} \sum_{q=0}^{N_2-1} \sum_{r=0}^{N_3-1} e^{2\pi i (\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{M}_{pqr}} \right|^2 \\ &= I_e F^2 \left| \sum_{p=0}^{N_1-1} e^{2\pi i (\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot p\vec{a}} \right|^2 \left| \sum_{q=0}^{N_2-1} e^{2\pi i (\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot q\vec{b}} \right|^2 \left| \sum_{r=0}^{N_3-1} e^{2\pi i (\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot r\vec{c}} \right|^2 \end{aligned} \quad (2.37)$$

Dans les conditions de Bragg (équations 2.25) ces sommes, qui peuvent être vues comme des séries géométriques, se simplifient :

$$I_{cristal} = I_e F^2 \left( \frac{\sin N_1 \pi h}{\sin \pi h} \right)^2 \left( \frac{\sin N_2 \pi k}{\sin \pi k} \right)^2 \left( \frac{\sin N_3 \pi l}{\sin \pi l} \right)^2 \quad (2.38)$$



## CHAPITRE 2. DIFFRACTION DANS LES CRISTAUX

Pour rappel, à l'aide de l'expression 2.12 et sachant que  $\phi = \pi/2 - \theta$ , l'intensité diffusée par un électron s'écrit :

$$\begin{aligned} I_e &= I_0 \left( \frac{r_e}{R} \right)^2 \frac{1 + \cos^2 2\phi}{2} \\ &= I_0 \left( \frac{r_e}{R} \right)^2 \frac{1 + \cos^2(2\theta)}{2} \end{aligned} \quad (2.39)$$

Si l'on s'écarte maintenant des conditions de Bragg, le vecteur  $(\vec{k} - \vec{k}_0) = \vec{B}_{hkl}$  devient :

$$\begin{aligned} \vec{B}_{hkl} &= \vec{B}_B + \vec{\Delta} = X_h \vec{a}^* + X_k \vec{b}^* + X_l \vec{c}^* \\ \vec{B}_B &= h \vec{a}^* + k \vec{b}^* + l \vec{c}^* \\ \vec{\Delta} &= \epsilon_h \vec{a}^* + \epsilon_k \vec{b}^* + \epsilon_l \vec{c}^* \end{aligned} \quad (2.40)$$

Tandis que l'intensité correspondante s'écrit :

$$\begin{aligned} I_e &= I_e F^2 \left( \frac{\sin N_1 \pi \epsilon_h}{\sin \pi \epsilon_h} \right)^2 \left( \frac{\sin N_2 \pi \epsilon_k}{\sin \pi \epsilon_k} \right)^2 \left( \frac{\sin N_3 \pi \epsilon_l}{\sin \pi \epsilon_l} \right)^2 \\ &\approx I_e F^2 N_1^2 \left( \frac{\sin N_1 \pi \epsilon_h}{N_1 \pi \epsilon_h} \right)^2 N_2^2 \left( \frac{\sin N_2 \pi \epsilon_k}{N_2 \pi \epsilon_k} \right)^2 N_3^2 \left( \frac{\sin N_3 \pi \epsilon_l}{N_3 \pi \epsilon_l} \right)^2 \end{aligned} \quad (2.41)$$

Ainsi, lorsque  $N$  est suffisamment grand et  $\epsilon_{hkl} = 0$  (conditions de Bragg), l'intensité diffractée par le cristal tend vers  $I_e F^2 N^2$  et vers 0 lorsque  $\epsilon = i/N$  avec  $i$  un entier quelconque.

Afin de calculer la puissance totale diffractée par le cristal, il est nécessaire de tenir compte à la fois des incidences voisines de l'angle de Bragg  $\Delta\theta$  mais également d'une surface élémentaire de détection  $dS$  située à la distance  $R$  du cristal (Figure 2.6). Nous choisissons de faire varier l'angle d'incidence en tournant le cristal autour d'un axe perpendiculaire au plan de diffraction, à la vitesse angulaire  $\omega = d(\Delta\theta/dt)$ .

Ainsi l'énergie reçue par le détecteur dans un angle solide  $d\Omega = dS/R^2$  est :

$$\begin{aligned} d\varepsilon &= I_{cristal} dS dt \\ &= I_{cristal} \frac{R^2}{\omega} d\Omega d(\Delta\theta) \\ &= I_0 \frac{r_e^2 F^2}{\omega} \frac{1 + \cos^2(2\theta)}{2} \\ &\quad \times \left( \frac{\sin N_1 \pi X_h}{\sin \pi X_h} \right)^2 \left( \frac{\sin N_2 \pi X_k}{\sin \pi X_k} \right)^2 \left( \frac{\sin N_3 \pi X_l}{\sin \pi X_l} \right)^2 d\Omega d(\Delta\theta) \end{aligned} \quad (2.42)$$

Il reste maintenant à exprimer les termes d'intégration  $d\Omega$  et  $d(\Delta\theta)$  en fonction de  $dX_h, dX_k, dX_l$  dans la base du réseau réciproque  $\vec{a}^*, \vec{b}^*, \vec{c}^*$ .

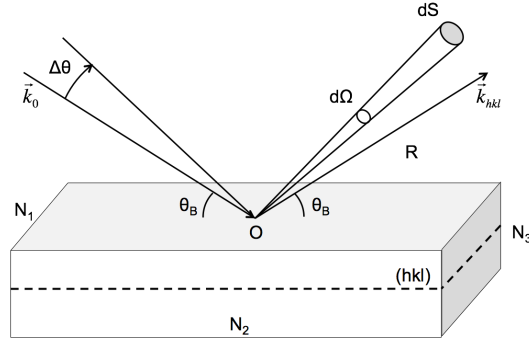


FIGURE 2.6 – Schéma représentant la diffraction sur les plans  $(hkl)$  à l'angle de Bragg  $(\theta_B)$  et à son voisinage  $(\theta_B + \Delta\theta)$ .  $dS$  représente un élément de surface du détecteur placé à la distance  $R$  du cristal, diffractant dans un angle solide  $d\Omega$ .

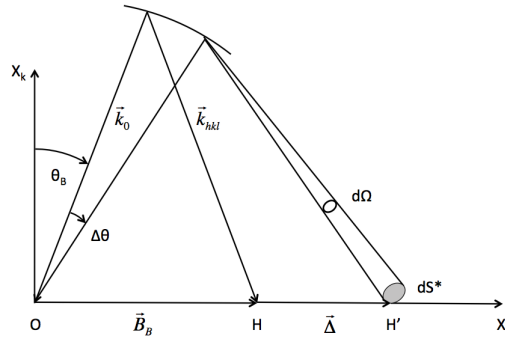


FIGURE 2.7 – Schéma représentant la diffraction, dans le réseau réciproque, à l'angle de Bragg  $(\theta_B)$  et à son voisinage  $(\theta_B + \Delta\theta)$ .  $dS^*$  représente un élément de surface de l'espace réciproque correspondant à l'angle solide  $d\Omega$  à la distance  $1/\lambda$ .

**Evaluation de l'angle solide  $d\Omega$**  Nous choisissons de positionner  $X_l$  selon le vecteur réciproque  $B_B$  et  $X_h, X_k$  parallèles aux plans réticulaires (Figure 2.7). Ainsi, la projection de  $dS^*$  sur le plan  $X_h, X_k$  définit un élément de surface des plans réticulaires, correspondant à l'angle solide  $d\Omega$ .

Puisque  $\|\vec{k}\| = 1/\lambda$ , la projection de  $dS^*$  sur  $X_h, X_k$  vaut :

$$dS^* \sin\theta_B = \frac{d\Omega}{\lambda^2} \sin\theta_B = dX_h dX_k \frac{V^*}{d^*} \quad (2.43)$$

où  $V^*/d^*$  est la surface unitaire du plan  $(\vec{a}^*, \vec{b}^*)$ .

On obtient finalement :

$$d\Omega = \frac{\lambda^2 V^* d_{hkl}}{\sin\theta_B} dX_h dX_k \quad (2.44)$$

**Evaluation de  $d(\Delta\theta)$**  La rotation du cristal dans le faisceau, et la variation de l'angle d'incidence  $\Delta\theta$  qui en découle, induit une variation du vecteur  $\vec{\Delta}$  selon  $X_l$

## CHAPITRE 2. DIFFRACTION DANS LES CRISTAUX

(Figure 2.7). Il est ainsi possible de relier  $d\Delta\theta$  à  $X_l$  à partir de la norme du vecteur réciproque  $\vec{B}_B$  :

$$\|\vec{B}_B\| = OH = \frac{1}{d_{hkl}} = \frac{2 \sin\theta_B}{\lambda} \quad (2.45)$$

En dérivant cette expression on obtient :

$$\begin{aligned} d(OH) &= \frac{2 \cos\theta_B}{\lambda} d(\Delta\theta) \\ dX_l &= \frac{d(OH)}{OH} = \frac{2 \cos\theta_B}{\lambda} d_{hkl} d(\Delta\theta) \end{aligned} \quad (2.46)$$

A partir des équations 2.44 et 2.46 nous obtenons finalement :

$$\begin{aligned} d\Omega d(\Delta\theta) &= \frac{\lambda^3 V^*}{2 \sin\theta_B \cos\theta_B} dX_h dX_k dX_l \\ &= \frac{\lambda^3}{V \sin 2\theta_B} dX_h dX_k dX_l \end{aligned} \quad (2.47)$$

Il est ainsi possible de réécrire l'équation 2.42, exprimant l'énergie reçue par le détecteur, à partir de l'équation 2.47 :

$$\begin{aligned} d\varepsilon &= I_0 \frac{r_e^2 F^2 \lambda^3}{\omega V \sin 2\theta_B} \frac{1 + \cos^2 2\theta_B}{2} \\ &\times \left( \frac{\sin N_1 \pi X_h}{\sin \pi X_h} \right)^2 \left( \frac{\sin N_2 \pi X_k}{\sin \pi X_k} \right)^2 \left( \frac{\sin N_3 \pi X_l}{\sin \pi X_l} \right)^2 dX_h dX_k dX_l \end{aligned} \quad (2.48)$$

L'intégration des sinus cardinaux est faite sur un intervalle très grand par rapport au domaine où  $\left(\frac{\sin N \pi X}{\sin \pi X}\right)$  est significatif. Ainsi :

$$\int_X \left( \frac{\sin N \pi X}{\sin \pi X} \right)^2 dX \approx \int_{-\infty}^{+\infty} N^2 \left( \frac{\sin N \pi X}{N \pi X} \right)^2 dX = N \quad (2.49)$$

Ainsi, l'intégration de l'expression 2.48 sur  $X_h$  et  $X_k$  permet de calculer l'énergie totale diffractée par le cristal dans une direction donnée :

$$d(\Delta\varepsilon) = I_0 \frac{r_e^2 F^2 \lambda^3}{\omega V \sin 2\theta_B} \frac{1 + \cos^2 2\theta_B}{2} N_1 N_2 \left( \frac{\sin N_3 \pi X_l}{\sin \pi X_l} \right)^2 dX_l \quad (2.50)$$

Pour calculer la puissance totale reçue par le détecteur durant la rotation  $\omega$  du cristal, il est nécessaire d'intégrer  $d(\Delta\varepsilon)$  (Equation 2.50) sur  $X_l$  :

$$P_{cin} = \omega \int_{X_l} d(\Delta\varepsilon) = I_0 \frac{r_e^2 F^2 \lambda^3}{V \sin 2\theta_B} \frac{1 + \cos 2\theta_B}{2} N_1 N_2 N_3 \quad (2.51)$$

Dans le cas où la surface  $S$  du cristal, d'épaisseur  $t$ , est éclairée par le faisceau incident,  $N_1 N_2 N_3 = \delta V / V$ , où  $\delta V = S t$  est le volume diffractant du cristal.

Nous obtenons finalement :

$$P_{cin} = I_0 Q_{cin} \delta V$$

$$Q_{cin} = \left(\frac{r_e}{V}\right)^2 \frac{1 + \cos^2 2\theta_B}{2} \frac{F^2 \lambda^3}{\sin 2\theta_B} \quad (2.52)$$

Pour rappel, dans cette expression :

- $I_0$  est l'intensité du faisceau incident,
- $\theta_B$  est l'angle de Bragg, l'angle d'incidence du faisceau sur les plans réticulaires correspondant au maximum de diffraction,
- $r_e$  est le rayon classique de l'électron,
- $V$  est le volume de la maille,
- $F$  est le facteur de structure de la maille,
- $\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau incident,
- $\frac{1+\cos^2 2\theta}{2}$  est le facteur de polarisation correspondant à une onde non polarisée.

La réflectivité intégrée représente le rapport de la puissance diffractée sur la puissance incidente sur le cristal. Dans le cas où le faisceau incident est parallèle, la puissance incidente est le produit de l'intensité par la section du faisceau ;  $P_i = I_0 S \cos \theta_B$ , avec  $S$  la surface éclairée du cristal.

Ainsi la réflectivité intégrée devient :

$$R_{cin} = \frac{P}{P_i} = Q_{cin} \frac{t}{\cos \theta_B} \quad (2.53)$$

### 2.2.5 Théorie dynamique

#### Limitation de la théorie cinématique

La théorie cinématique (ou géométrique) issue du travail de Laue (1912), et détaillée par Zachariasen (1945), n'est pas physiquement correcte pour plusieurs raisons. Tout d'abord, la théorie cinématique se base sur l'approximation que tous les centres diffuseurs reçoivent une onde de même amplitude, et néglige les interactions rayonnement-matière le long de la traversée du cristal. Cette hypothèse, qui ne respecte pas le principe de conservation de l'énergie, n'est valable que pour de très petits cristaux dans lesquels l'absorption est négligeable. Ainsi, la théorie cinématique ne doit être utilisée que lorsque  $\mu t \ll 1$ , avec  $\mu$  le coefficient d'absorption linéaire et  $t$  l'épaisseur du cristal.

La théorie cinématique néglige également les interférences entre les faisceaux incident et diffracté. Là encore, l'hypothèse n'est valable que pour les cristaux de tailles microscopiques. Darwin (1914) et Ewald (1917) furent les premiers à remettre en cause la théorie cinématique, et à introduire la théorie dynamique prenant en compte ces limitations.

Ainsi, la théorie dynamique modélise les interférences constructives et destructives, dues aux différences de phase des faisceaux réfracté et diffracté, le long de leur trajet dans le cristal. Au delà d'une certaine épaisseur, un équilibre se crée entre les deux faisceaux et l'augmentation de l'épaisseur du cristal n'augmente pas sa

réflectivité. Ce phénomène, qui n'est pas pris en compte par la théorie cinématique (Equation 2.53), est appelée "Extinction primaire".

### Réflectivité intégrée

L'échange d'énergie entre les faisceaux réfracté et diffracté, le long de leur trajet dans le cristal, est appelé "Pendellösung". Il crée des oscillations de l'intensité du faisceau diffracté, qui est complètement éteint pour une épaisseur du cristal égal à la longueur d'extinction  $\Lambda_0$  :

$$\Lambda_0 = \frac{V}{r_e \lambda F} \quad (2.54)$$

On définit de plus le paramètre :

$$A = \frac{K}{\cos\theta} \frac{t}{\Lambda_0} \quad (2.55)$$

où  $K$  est le facteur de polarisation, égale à  $\frac{1+\cos 2\theta_B}{2}$  pour une onde non polarisée.

La théorie dynamique prédit une réflectivité intégrée  $R_{dyn}$  en géométrie de Laue symétrique (absence d'angle d'asymétrie  $\alpha$ , Figure 2.5) (Zachariasen, 1945) :

$$R_{dyn} = \frac{K}{2\sin 2\theta} \frac{\lambda}{\Lambda_0} B_0(2A) \quad (2.56)$$

$$B_0(2A) = \int_0^{2A} J_0(\rho) d\rho$$

où  $J_0$  est la fonction de Bessel d'ordre 0 et  $B_0(2A)$  la fonction du Pendellösung modulant la réflectivité intégrée (Figure 2.8).

La Figure 2.8 présente les oscillations du pendellösung en fonction de  $t/\Lambda_0$ . Sa valeur oscille autour de 1 avec l'augmentation de l'épaisseur du cristal, et tend vers 1 à l'infini. La fréquence des oscillations est égale à la longueur d'extinction, avec un minimum tous les  $\Lambda_0$ . La fonction  $B_0(2A)$  prend pour valeurs limites :

$$B_0(2A) = \begin{cases} 2A & \text{si } A \ll 1 \\ 1 & \text{si } A \gg 1 \end{cases} \quad (2.57)$$

Ainsi, la théorie cinématique peut être vue comme une limite de la théorie dynamique. Lorsque  $t \ll \Lambda_0$  nous obtenons bien  $R_{dyn} = R_{cin}$  et le cristal est dit fin. Dans le cas contraire,  $t \gg \Lambda_0$  la théorie dynamique s'applique et le cristal est dit épais.

Il est possible de réutiliser l'expression 2.52 en remplaçant  $Q_{cin}$  par  $Q_{dyn}$  :

$$R_{dyn} = Q_{dyn} \frac{t}{\cos\theta_B} \quad (2.58)$$

$$= Q_{cin} f(A) \frac{t}{\cos\theta_B}$$

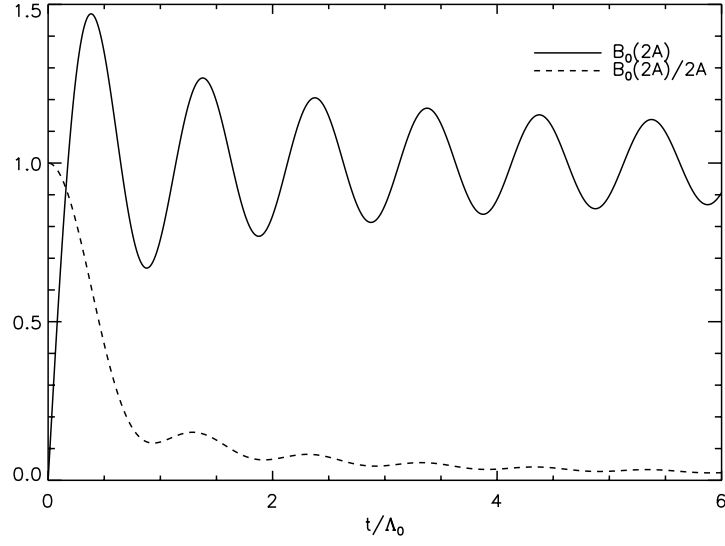


FIGURE 2.8 – Evolution des fonctions  $B_0(2A)$  et  $f(A) \approx B_0(2A)/2A$  en fonction de l'épaisseur du cristal.

Zachariasen (1945) donne l'expression de  $f(A)$  dans le cas de la géométrie de Laue (Figure 2.8) :

$$f(A) = \frac{B_0(2A) + |\cos 2\theta_B| B_0(2A) |\cos \theta_B|}{2A(1 + \cos^2 2\theta_B)} \approx \frac{B_0(2A)}{2A} \quad (2.59)$$

**Largeur du domaine de diffraction** Dans le cas de la géométrie de Laue symétrique, la largeur à mi-hauteur du domaine de diffraction (intensité diffractée en fonction de l'angle d'incidence) est donnée par Authier (2001) :

$$2\delta_D = \frac{d_{hkl}}{\Lambda_0} \quad (2.60)$$

où  $\delta_D$  est appelé la largeur de Darwin.

De plus, cette largeur à mi-hauteur n'est valable que pour un cristal idéal, infiniment périodique. A titre d'exemple, la valeur de  $2\delta$  d'un cristal parfait de silicium (111) à 500 keV est de 0,1 arcsec. En utilisant la relation de Bragg il est possible d'estimer la bande passante en énergie d'un tel cristal à environ 30 eV, soit un  $\Delta E/E \approx 0.006\%$  ! Ainsi, même s'il était possible de fabriquer un cristal idéal sans aucun défaut, il serait inutilisable sur une lentille de Laue à vocation astrophysique, nécessitant une bande passante en énergie beaucoup plus large (§4.1.3).

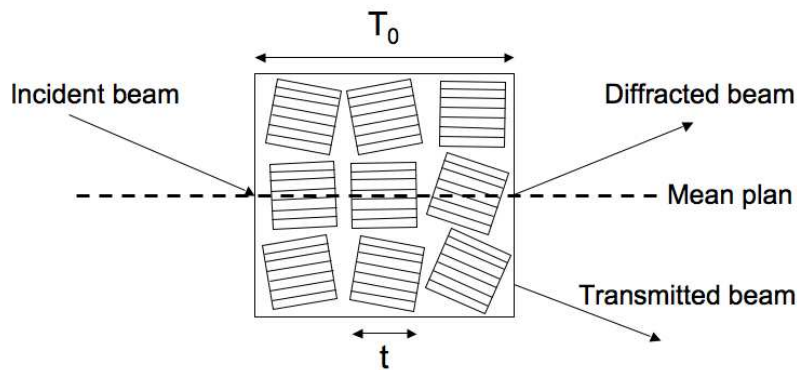


FIGURE 2.9 – Représentation du modèle de Darwin des cristaux mosaïques.  $T_0$  est la taille du cristal tandis que  $t$  est la taille des cristallites.

### 2.3 Diffraction dans un cristal mosaïque

Dans le cadre de la réalisation d'une lentille de Laue, l'utilisation de cristaux mosaïques est un des moyens utilisés pour élargir le domaine de diffraction des cristaux parfaits ou quasi-parfaits. Les cristaux mosaïques possèdent divers défauts, induits lors de leur fabrication, qui peuvent être classés selon leur dimension :

- Dimension 0 : le défaut est localisé sur un noeud du cristal et influence les noeuds voisins (lacune, interstitiel, impureté).
- Dimension 1 : le défaut est localisé sur une courbe et influence les noeuds de cette courbe ainsi que leurs voisins (dislocation).
- Dimension 2 : le défaut est localisé sur une surface (faces externes du cristal, faute d'empilement, joint de grains).

Si les défauts sont homogènes dans le cristal, celui-ci peut-être décrit par le modèle de Darwin (Darwin, 1914, 1922) comme un empilement de micro-cristaux (les cristallites) désorientés les uns par rapport aux autres (Figure 2.9). Les théories cinématique et dynamique, décrites précédemment, peuvent alors s'appliquer à l'intérieur de chaque cristallite.

Lorsqu'un faisceau X-gamma traverse un tel cristal, il est possible que celui-ci rencontre plusieurs cristallites orientées de la même manière. Dans ce cas, la première de ces cristallites réduit l'intensité incidente sur les cristallites suivantes. Ce phénomène est appelé "Extinction secondaire".

Au contraire, si les cristallites sont suffisamment désorientées pour que l'écart entre les orientations des plans réticulaires soient plus grande que la largeur de Darwin, alors l'intensité totale diffractée par le cristal est la somme des intensités diffractées par les cristallites. Un cristal mosaïque possédant des cristallites suffisamment fines pour ne pas subir l'extinction primaire (§2.2.5) et suffisamment désorientées pour ne pas subir l'extinction secondaire, est appelé "Idéalement imparfait".

### 2.3.1 Distribution angulaire des cristallites

Le modèle de Darwin des cristaux mosaïques part de l'hypothèse que la distribution angulaire des cristallites est une fonction d'erreur gaussienne (Zachariasen, 1945) :

$$W(\Delta\theta) = \frac{1}{\eta\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\Delta\theta^2}{2\eta^2}} = \frac{2}{\Omega} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} e^{-\ln 2 \left(\frac{\Delta\theta}{\Omega/2}\right)^2} \quad (2.61)$$

où  $\Delta\theta$  est la déviation par rapport à la direction moyenne,  $\eta$  est la déviation standard, et  $\Omega$  est la largeur à mi-hauteur de la distribution, appelée "Mosaïcité" :

$$\Omega = 2\eta\sqrt{2\ln 2} \quad (2.62)$$

En plus de l'hypothèse d'une distribution gaussienne, la représentation de Darwin des cristaux mosaïques implique que :

1. le nombre de cristallites traversées est suffisamment grand pour que la distribution  $W(\Delta\theta)$  soit continue,
2. la distribution est à symétrie cylindrique,
3. toutes les cristallites possèdent la même épaisseur  $t$ ,
4. les cristallites sont suffisamment fines pour que l'absorption y soit négligeable  $\mu t \ll 1$ .

### 2.3.2 Réflectivité d'un cristal mosaïque

Pour calculer la réflectivité d'un cristal mosaïque nous considérons un cristal d'épaisseur  $T$  et d'extension latérale infinie. Il est constitué de cristallites de taille  $t$  est de surface  $S$  presque alignées avec la surface du cristal.

La puissance diffractée par une cristallite est  $P(\theta'_i - \theta'_B)$ , avec  $\theta'_i$  l'angle d'incidence du faisceau sur les plans réticulaires de la cristallite, reliée à  $\theta_i$  l'angle d'incidence moyen sur le cristal par  $\theta'_i = \theta_i + \Delta\theta$ . De la même manière, l'angle de Bragg d'une cristallite  $\theta_B$  est reliée à l'angle de Bragg moyen du cristal par  $\theta'_B = \theta_B + \Delta\theta$ .

La réflectivité d'une couche d'épaisseur  $dT$ , contenant  $dT/t$  cristallites, s'écrit :

$$\int W(\Delta\theta) \frac{P(\theta_i - \theta'_B + \Delta\theta)}{P_0} d\theta_i \quad (2.63)$$

Dans le cadre de l'utilisation des cristaux sur une lentille de Laue, la valeur de la mosaïcité sera toujours très supérieure à la largeur de Darwin des cristallites. Ainsi, les cristaux ne seront pas soumis à l'extinction secondaire et la distribution  $W(\Delta\theta)$  peut être considérée comme constante autour de la position  $\Delta\theta = \theta_i - \theta_B$  :

$$\int W(\Delta\theta) \frac{P(\theta_i - \theta'_B + \Delta\theta)}{P_0} d\theta_i \approx W(\Delta\theta) R \quad (2.64)$$

avec  $R$  la réflectivité intégrée d'une cristallite.

La réflectivité  $\sigma$  d'une épaisseur de cristal  $dT$  s'écrit alors :

$$\sigma dT = W(\Delta\theta) R \frac{dT}{t} \quad (2.65)$$



Selon la taille  $t$  des cristallites,  $R$  proviendra de la théorie cinématique (Equation 2.53) ou dynamique (Equation 2.58).

En traversant une couche de cristal d'épaisseur  $dT$ , le faisceau incident va être en partie absorbé (coefficient  $\mu$ ) et diffracté (coefficient  $\sigma$ ) en faveur du faisceau diffracté. Ce dernier subit les mêmes atténuations, puisqu'un faisceau diffracté deux fois revient dans la direction incidente d'origine. Ainsi, l'évolution des puissances incidentes et diffractées lors de la traversé du cristal peut se traduire par (cas Laue symétrique) :

$$\begin{aligned} dP_0 &= -P_0\mu \frac{dT}{\cos\theta_B} - P_0\sigma + PdT\sigma \\ dP &= -P\mu \frac{dT}{\cos\theta_B} - P\sigma dT + P_0dT\sigma \end{aligned} \quad (2.66)$$

Sachant que la puissance incidente  $P_0(T = 0)$  est connue et que la puissance diffractée est nulle à la surface d'entrée  $P(T = 0) = 0$ , il est possible d'intégrer ces puissances pour calculer la réflectivité. :

$$\begin{aligned} R &= \frac{P(T_0)}{P_0(0)} = \sinh(\sigma T_0) e^{-\left(\frac{\mu}{\cos\theta_B} + \sigma\right)T_0} \\ &= \frac{1}{2}(1 - e^{-2\sigma T_0}) e^{-\mu \frac{T_0}{\cos\theta_B}} \end{aligned} \quad (2.67)$$

### 2.3.3 Courbe de diffraction

Afin de pouvoir réaliser une lentille de Laue la plus efficace possible à l'aide de cristaux mosaïques, il est nécessaire d'optimiser deux paramètres, la mosaïcité issue d'un compromis (4.1.3) et la réflectivité qui doit être la plus élevée possible. Deux types de mesure existent pour pouvoir mesurer ces deux paramètres.

- La première consiste à faire tourner le cristal dans un faisceau monochromatique et parallèle. Cette technique a l'avantage de ne pas nécessiter de détecteur pixélisé ou de spectrographe mais d'un simple compteur. On mesure alors l'intensité diffractée en fonction de l'angle d'incidence.
- La deuxième technique de mesure consiste à soumettre le cristal (fixe) à un faisceau blanc. On mesure alors l'intensité en fonction de la position sur le détecteur. Il s'agit en fait de l'utilisation du cristal sur une lentille de Laue, mais nécessite une camera pixélisée.

Au cours de cette thèse, nous avons essentiellement utilisé la première technique, plus simple à mettre en oeuvre. Les courbes obtenues lors de ces mesures sont nommées "Rocking Curves (RC)".

Il est possible d'obtenir les caractéristiques de cette courbe, en posant :

$$\begin{aligned} \alpha &= 2W(0)QT_0 = 4\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{QT_0}{\Omega} \\ u &= \frac{\Delta\theta}{\Omega/2} \end{aligned} \quad (2.68)$$

A partir de ces variables, il est possible de calculer la réflectivité, la largeur à mi-hauteur et la réflectivité maximale de la RC.

$$\begin{aligned}
 R &= \frac{1}{2}(1 - e^{-\alpha e^{-\ln 2 u^2}})e^{-\mu T_0} \\
 \Delta u_{fwhm} &= 2\sqrt{\frac{-\ln(-\frac{1}{\alpha}\ln(\frac{1}{2}(1 + e^{-\alpha})))}{\ln 2}} \\
 R_{max} &= \frac{1}{2}(1 - e^{-\alpha})e^{-\mu T_0}
 \end{aligned} \tag{2.69}$$

Ces expressions seront largement utilisées dans le reste de cette thèse afin de comparer les performances maximales théoriques de divers matériaux (Chap. 3) ou bien pour comparer les modèles aux mesures réelles d'échantillons (Chap. 4).

## 2.4 Diffraction dans un cristal courbe

La courbure des plans réticulaires des cristaux est une autre solution pour élargir le domaine de diffraction des cristaux parfaits ou quasi-parfaits. Ces cristaux ont la particularité d'offrir au faisceau incident une distribution carrée d'orientation des plans réticulaires. Selon la technique de courbure employée, celle-ci peut-être cylindrique ou sphérique. Le premier avantage de ces cristaux est la distribution angulaire, également carrée, du faisceau diffracté qui permet une meilleure concentration des photons sur le plan de détection que les cristaux mosaïques, à la distribution gaussienne.

### 2.4.1 Techniques de courbure

Plusieurs techniques sont couramment utilisées afin de courber les plans réticulaires des cristaux :

- **Gradient thermique.** Lorsque l'on applique un gradient de température à un cristal, la différence de dilatation thermique entre les faces chaude et froide entraîne une courbure sphérique des plans réticulaires, perpendiculaires au gradient thermique. Cette technique permet d'obtenir une courbure propre et homogène, comme indiqué dans (Smither et al, 2005), mais nécessite un appareillage lourd et volumineux ainsi qu'une grande quantité d'énergie. Les contraintes associées au domaine spatial ne permettent donc pas d'utiliser un tel dispositif sur une lentille de Laue spatialisée.
- **Courbure élastique.** La courbure élastique des cristaux est largement utilisée pour réaliser des monochromateurs X-gamma. Un dispositif mécanique complexe est alors employé pour obtenir une courbure cylindrique et contrôler la bande passante en énergie du faisceau. Cette technique, comme la précédente, nécessite un appareillage lourd et volumineux et n'est donc pas utilisable sur une lentille de Laue. Toutefois, une étude est en cours pour courber des cristaux à l'aide de contraintes mécaniques issues d'un collage.

- **Courbure par striation.** La gravure de stries périodiques sur la face d'un cristal permet de relâcher les contraintes existantes à l'intérieur et d'obtenir une courbure cylindrique dont l'axe est parallèle aux stries. Cette technique a été étudiée avec succès par Barrière et al (2010), pour une utilisation sur une lentille de Laue. Celle-ci ne permet pas encore de courber des épaisseurs supérieures à 5 mm.
- **Gradient de concentration.** Un alliage binaire cristallin dont la concentration des constituants varie le long de l'axe de croissance provoque une courbure sphérique des plans perpendiculaires à l'axe du gradient de concentration. Il s'agit de la méthode que nous avons utilisée au cours de cette thèse avec un faible gradient de concentration de germanium dans du silicium (Abrosimov, 2005). Les cristaux ainsi produits sont intrinsèquement courbes et ne nécessitent pas de traitement particulier après leur croissance et leur découpe.

### 2.4.2 Intensité diffractée par les cristaux courbes

Nous nous intéressons ici à la théorie de la diffraction dans un cristal courbe, dont on donne les principaux résultats permettant de calculer l'intensité diffractée dans un tel cristal. Pour cela nous nous appuyons sur les travaux de Malgrange (2002) et Keitel et al (1999).

La diffraction dans les cristaux courbes est un cas particulier de la diffraction dans les cristaux déformés, développée indépendamment par Penning and Polder (1961) et Kato (1964). La théorie PPK d'optique géométrique qu'ils ont créé, prédit la trajectoire courbe de l'onde dans le cristal déformé, tout comme la trajectoire d'une onde lumineuse dans un matériau à gradient d'indice de réfraction.

La théorie PPK introduit le gradient de contrainte  $\beta$ , qui décrit la déformation des plans réticulaires :

$$\beta = \frac{\lambda_0}{\cos^2 \theta_B} \frac{\partial^2 \vec{h} \cdot \vec{u}}{\partial s_0 \partial s_h} \quad (2.70)$$

où  $\vec{u}$  est le vecteur déplacement de l'atome par rapport à sa position idéale,  $\vec{h}$  est le vecteur du réseau réciproque et  $\vec{s}_0$  et  $\vec{s}_h$  sont respectivement les vecteurs unitaires des faisceaux incidents et réfléchis.

Dans le cas Laue symétrique et lorsque l'angle  $\theta_B$  est petit, on a :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \vec{h} \cdot \vec{u}}{\partial s_0 \partial s_h} &= \cos^2 \theta_B \frac{\partial^2 \vec{h} \cdot \vec{u}}{\partial z^2} - \sin^2 \theta_B \frac{\partial^2 \vec{h} \cdot \vec{u}}{\partial z^2} \\ &\approx \cos^2 \theta_B \frac{\partial^2 \vec{h} \cdot \vec{u}}{\partial z^2} \end{aligned} \quad (2.71)$$

où  $z$  est la profondeur dans le cristal.

La largeur à mi-hauteur du domaine de diffraction, équivalant à la mosaïcité dans les cristaux mosaïques, est définie comme :

$$\begin{aligned}\Omega &= \beta T_0 \delta_D \\ &= \Lambda_0 T_0 \delta_D \frac{\partial^2 \vec{h} \cdot \vec{u}}{\partial z^2}\end{aligned}\tag{2.72}$$

Ainsi,  $\Omega$  est indépendant de l'énergie et ne dépend que de la courbure des plans réticulaires et de l'épaisseur du cristal.

Dans le cas particulier des cristaux de  $Si_{1-x}Ge_x$ , utilisés dans cette thèse, il est possible de relier le rayon de courbure des plans réticulaires  $R_c$  au gradient de concentration de germanium  $C_{Ge}$  (en pourcentage atomique) (Smither et al, 2005) :

$$R_c \approx \frac{2500}{\nabla C_{Ge}} = \frac{T_0}{\Omega}\tag{2.73}$$

Ainsi, en mesurant la largeur à mi-hauteur de la RC, il est possible de remonter au gradient de concentration en germanium, au rayon de courbure des plans et au gradient de contrainte dans le cristal :

$$\beta = \frac{\Omega}{T_0 \delta_D}\tag{2.74}$$

Authier and Balibar (1970) ont montré que la théorie PPK d'optique géométrie n'est valide que lorsque la variation d'orientation des plans réticulaires reste très inférieure à la largeur de Darwin sur une distance égale à la longueur d'extinction. Si cette condition n'est pas respectée, un nouveau champ d'onde est créé à l'endroit où le faisceau est parallèle aux plans réticulaires, enlevant de l'intensité au faisceau diffracté. Cela se produit lorsque  $\beta$  dépasse la valeur critique  $\beta_c$  :

$$|\beta| > \beta_c \quad \text{avec} \quad \beta_c = \frac{\pi}{2\Lambda_0}\tag{2.75}$$

Dans le cas de la géométrie de Laue et d'un gradient de contrainte constant, la fraction de l'intensité transférée au nouveau champ d'onde est (Balibar et al, 1983) :

$$\exp(-2\pi\beta_c/|\beta|)\tag{2.76}$$

L'intensité totale du faisceau diffracté est donc (Keitel et al, 1999) :

$$I = I_0(1 - e^{-2\pi\frac{\beta_c}{\beta}})e^{-\frac{\mu T_0}{\cos\theta_B}}\tag{2.77}$$



# 3

## Etude comparative des matériaux diffractant

La réflectivité des matériaux, guidant le choix des cristaux pour une lentille de Laue, est un compromis entre leur efficacité de diffraction, leur absorption et la qualité de leur croissance. Dans ce chapitre, seul les deux premiers termes seront explorés. La qualité de fabrication sera traitée ultérieurement après la mesure de quelques échantillons.

Ce chapitre commence par isoler, au sein du modèle de diffraction, les paramètres cristallographiques influençant la sélection des matériaux diffractant. Les réflectivités de ces matériaux sont ensuite modélisées et comparées pour mettre en avant les meilleurs candidats, en fonction de l'énergie utilisée. Diverses contraintes sont enfin appliquées tel que le poids et la rigidité des cristaux, afin de tenir compte des contraintes liées au domaine spatial pour lequel ils seront utilisés.

### 3.1 Modèle de diffraction

La quasi totalité des cristaux macroscopiques ( $> 1$  mm) sont naturellement mosaïques. Leur croissance cristalline n'est pas parfaite et de multiples défauts viennent endommager l'agencement régulier des atomes. Le modèle de Darwin (c.f. §2.3) est ainsi capable de modéliser la plupart des matériaux étudiés dans ce chapitre, à l'exception des cristaux quasi parfait de silicium et germanium, traités en fin de chapitre.

L'expression de la réflectivité des cristaux mosaïques est rappelée ci-dessous (c.f. §2.3), afin d'en extraire les paramètres permettant de présélectionner les matériaux les plus performant puis calculer leur réflectivité théorique.

Le modèle de Darwin définit la réflectivité au pic (rapport entre l'intensité diffractée et l'intensité incidente) d'un cristal mosaïque comme :

$$R_{max} = \frac{1}{2} (1 - e^{-\alpha}) e^{-\mu T_0}, \quad (3.1)$$

$$\alpha = 4 \left( \frac{\ln 2}{\pi} \right)^{1/2} \frac{Q_{dyn}(t) T_0}{\Omega}, \quad (3.2)$$

Le facteur  $Q_{dyn}$  peut être exprimé à partir des expressions 2.58, 2.59 et 2.52 :

$$Q_{dyn} = \frac{d_{hkl} B_0(2A) r_e \lambda |F_{hkl}|}{2 t V}, \quad (3.3)$$

Pour rappel, dans ces expressions :

- $\mu$  est le coefficient d'absorption linéaire du matériau.
- $\Omega$  est la valeur de la mosaïcité, la largeur à mi-hauteur de la distribution angulaire (gaussienne) des cristallites.
- $r_e$  est le rayon classique de l'électron.
- $B_0(2A)$  est la fonction de la Pendellösung (oscillations dues aux interférences entre ondes réfractées et réfléchies).
- $\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau diffracté.
- $t$  est la taille des cristallites (c.f. §2.3).
- $T_0$  est l'épaisseur du cristal traversée par le faisceau.
- $d_{hkl}$  est la distance inter-réticulaire.
- $V$  est le volume de la maille élémentaire.
- $F_{hkl}$  est le facteur de structure.

$T_0$ , l'épaisseur du cristal, intervient à la fois dans l'absorption qui tend à diminuer la réflectivité, mais aussi au sein de l'expression de  $Q_{dyn}$ . Il est ainsi possible de calculer l'épaisseur optimale du cristal en dérivant l'expression de la réflectivité en fonction de  $T_0$  (c.f. §2.67). Afin de comparer les performances maximales des différents matériaux, l'épaisseur des cristaux, simulées dans ce chapitre, sera toujours optimisée en fonction des paramètres cristallins et de l'énergie utilisée.

$d_{hkl} = a/(h^2 k^2 l^2)^{1/2}$ ,  $V_m = a^3$  (pour les mailles cubiques) et  $\theta = \lambda(h^2 k^2 l^2)^{1/2}/2a$  sont toutes fonctions du paramètre de maille  $a$ , lequel doit être minimisé pour une

meilleure réflexivité. Dans le cas de maille simple, mono-élément, les mailles cristallines compactes de type cubiques sont donc à privilégier pour la recherche de matériaux diffractant mosaïques.

Le facteur de structure  $F_{hkl}$  (c.f. §2.2.3) dépend à la fois du facteur de diffusion atomique (dépendant de la configuration électronique des atomes) et d'un facteur géométrique qui reflète l'organisation des atomes dans la maille élémentaire. Ce paramètre augmente avec le numéro atomique de l'élément, il favorise ainsi les matériaux à  $Z$  élevés, c'est à dire aux plus hautes énergies (Fig. 3.1). (Les coefficients de diffusion atomique proviennent des bases de données du laboratoire de cristallographie de l'université de Genève, tandis que l'absorption linéaire est calculée à partir des données XCOM du NIST américain).

La taille des cristallites  $t$  est un paramètre du modèle de Darwin permettant de quantifier la qualité cristalline, tout comme la mosaïcité. Leurs tailles dépendent fortement de la nature de l'élément et de la qualité de fabrication du cristal. Plus elle sont grandes, plus l'efficacité de diffraction est limitée par l'extinction primaire (Eq. 3.3) (c.f. §2.2.5). Ce paramètre a une grande influence sur les performances des cristaux comme le montre la Figure 3.1.

Tout au long de ce chapitre, et afin de pouvoir comparer les performances théoriques à qualité cristalline égales, le modèle de diffraction des cristaux mosaïques utilisera les mêmes paramètres :

- $\Omega = 30$  arcsec.
- $\lambda = hc/E$  où  $E = 200, 500$  et  $850$  keV.
- $t = 60 \mu m$ .

## 3.2 Présélection des matériaux

---

Avant de sélectionner les matériaux diffractant selon leurs propriétés cristallographiques, il est nécessaire d'écarter les matériaux non cristallins à température et pression ambiante ou fortement toxiques. Ces matériaux ne sont en effet pas adaptés à une utilisation sur une lentille de Laue.

Les équations du modèle de diffraction (Eq. 3.3) montrent l'importance du volume de la maille cristalline sur les performances de diffraction. C'est pourquoi, les structures cubiques suivantes, plus compactes, ont été sélectionnées pour faire partie du comparatif :

- Cubique centré
- Cubique face centrée
- Diamant
- Zinc Blende (pour composés binaires)

Au sein de ce chapitre nous nous limiterons aux matériaux mono et bi-éléments. Au-delà de deux éléments, l'augmentation du volume de la maille cristalline entraîne une forte dégradation des performances.

Les composés bi-éléments ou binaires sont sélectionnés parmi les matériaux courants en électronique ou mécanique et possédant une structure zinc blende. La plupart de ces matériaux sont semi-conducteur ou céramiques, et de type :



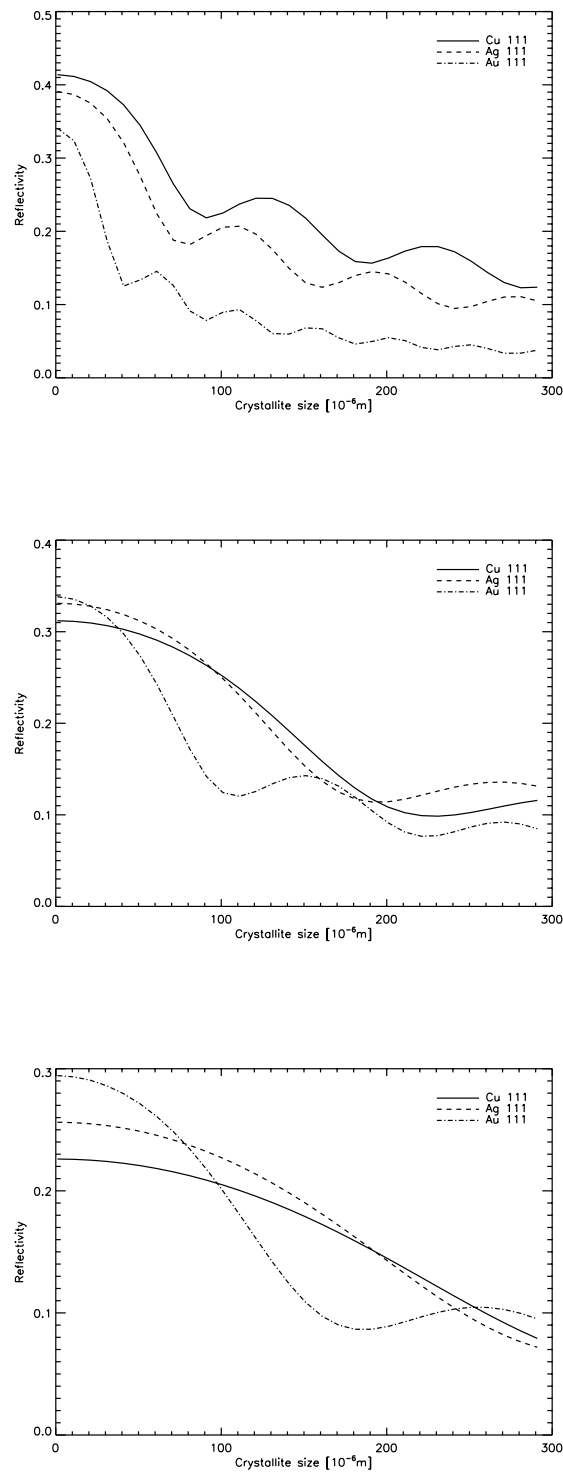


FIGURE 3.1 – De haut en bas ; réflectivité simulée à 200, 500 et 850 keV du cuivre, de l'argent et de l'or en fonction de la taille des cristallites. La mosaïcité est fixée à 30 arcsec. L'épaisseur des cristaux est optimisée en chaque point de la courbe en fonction de la taille des cristallites et de l'énergie (c.f. §4.1.2).

### 3.3. RÉSULTATS DE MODÉLISATION DES MATÉRIAUX MONO-ÉLÉMENT

|    |    |    |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |    |    |
|----|----|----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|----|----|
| 1  |    |    |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     | 2   |    |    |
| H  |    |    |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     | He  |    |    |
| 3  | 4  |    |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     | 5   | 6   | 7   | 8   | 9  | 10 |
| Li | Be |    |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     | B   | C   | N   | O   | F  | Ne |
| 11 | 12 |    |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     | 13  | 14  | 15  | 16  | 17 | 18 |
| Na | Mg |    |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     |     | Al  | Si  | P   | S   | Cl | Ar |
| 19 | 20 | 21 | 22  | 23  | 24  | 25  | 26  | 27  | 28  | 29  | 30  | 31  | 32  | 33  | 34  | 35  | 36  |    |    |
| K  | Ca | Sc | Ti  | V   | Cr  | Mn  | Fe  | Co  | Ni  | Cu  | Zn  | Ga  | Ge  | As  | Se  | Br  | Kr  |    |    |
| 37 | 38 | 39 | 40  | 41  | 42  | 43  | 44  | 45  | 46  | 47  | 48  | 49  | 50  | 51  | 52  | 53  | 54  |    |    |
| Rb | Sr | Y  | Zr  | Nb  | Mo  | Tc  | Ru  | Rh  | Pd  | Ag  | Cd  | In  | Sn  | Sb  | Te  | I   | Xe  |    |    |
| 55 | 56 | 57 | 72  | 73  | 74  | 75  | 76  | 77  | 78  | 79  | 80  | 81  | 82  | 83  | 84  | 85  | 86  |    |    |
| Cs | Ba | La | Hf  | Ta  | W   | Re  | Os  | Ir  | Pt  | Au  | Hg  | Tl  | Pb  | Bi  | Po  | At  | Rn  |    |    |
| 87 | 88 | 89 | 104 | 105 | 106 | 107 | 108 | 109 | 110 | 111 | 112 | 113 | 114 | 115 | 116 | 117 | 118 |    |    |
| Fr | Ra | Ac | Rf  | Db  | Sg  | Bh  | Hs  | Mt  | Ds  | Rg  | Cp  | Uut | Uuq | Uup | Uuh | Uus | Uuo |    |    |

FIGURE 3.2 – Tableau périodique des éléments dans lequel sont présentés les matériaux diffractant purs présélectionnés (encadrés). Ces cristaux possèdent une structure cubique stable à pression et température ambiante.

- II-VI
- III-V
- Alliage de silicium

La liste complète des éléments purs étudiés est présentée au sein du tableau périodique des éléments (Fig. 3.2). Quant aux matériaux binaires présélectionnés, ils sont visibles Figure 3.7.

Il est important de noter que la simulation des matériaux ne se base que sur leur propriétés cristallines et non sur leur faisabilité technique. Les mesures d'échantillons décrites dans le chapitre suivant permettent d'avoir une première idée de ce paramètre, essentiel dans la sélection des matériaux.

### 3.3 Résultats de modélisation des matériaux mono-élément

#### 3.3.1 Réflectivité

La Figure 3.3 présente la réflectivité maximale, simulée pour les matériaux purs présélectionnés (présentés en Z croissant). Ce calcul utilise les plans diffractant les plus performants en fonction du type de structure :

- 111 pour les cristaux cubiques faces centrées et diamant
- 110 pour les cristaux cubiques centrés

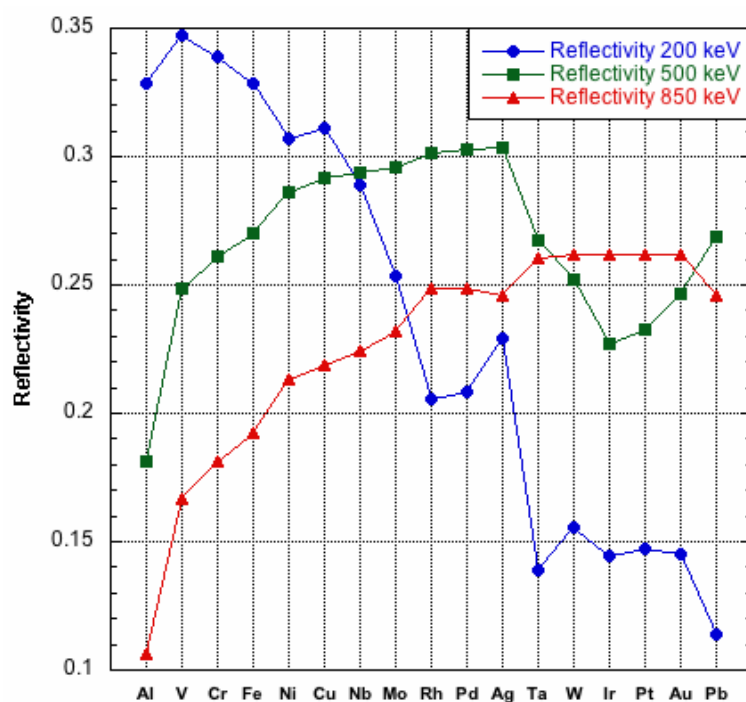


FIGURE 3.3 – Réflectivité des matériaux mono éléments pour trois énergies différentes ; 200, 500, 850 keV. Les matériaux sont classés par numéros atomiques croissants. La réflectivité est calculée pour une mosaïcité de 30 arcsec, une taille de cristallites de 60 microns et une épaisseur optimale à chaque couple énergie - élément.

### 3.3. RÉSULTATS DE MODÉLISATION DES MATÉRIAUX MONO-ÉLÉMENT

L'influence de l'énergie diffractée sur le choix du cristal est directement visible sur la Figure 3.3. Les matériaux à faible numéro atomique ( $Z < 42$ ) sont ainsi plus efficaces à plus faible énergie ( $E < 500\text{keV}$ ) et inversement. Les matériaux à  $Z$  élevés sont pénalisés par leur faible épaisseur optimale, insuffisante pour des cristallites de  $60\text{ }\mu\text{m}$ . La Figure 3.1, à  $200\text{ keV}$  (haut) montre la perte de réflectivité plus rapide à  $Z$  élevé (Or) en fonction de la taille des cristallites.

Les matériaux aux faibles numéros atomiques  $Z < 42$  (Al, V, Cr, Fe, Ni et Cu) sont plus efficaces à  $200\text{ keV}$  avec des réflectivités toujours comprises entre 30 et 35%.

A  $500\text{ keV}$ , les matériaux aux numéros atomiques compris entre 42 et 73 (Nb, Mo, Rh, Pd et Ag) sont les plus efficaces avec des réflectivités proches de 30%.

Les cristaux aux  $Z$  supérieurs à 73 (Ta, W, Ir, Pt, Au et Pb) sont avantagés par leurs densités électroniques supérieures. Ils bénéficient de réflectivité comprises entre 24 et 26%.

En ne se basant que sur la réflectivité des cristaux purs, les trois éléments les plus performants, correspondant aux trois domaines en énergie, sont respectivement le vanadium, l'argent et le groupe de l'iridium, platine et or.

Les réflectivités identiques de ces trois derniers éléments sont dues à leurs propriétés cristallines très proches.

#### 3.3.2 Contraintes de Poids

Lors de la conception d'un observatoire spatial la masse de la charge utile est une contrainte prépondérante. Dans le cas de la lentille de Laue, une part importante de cette charge provient de la masse de cristaux embarquée ( $1/3$  du CU pour MAX (von Ballmoos et al, 2004c)). Ainsi la masse du matériau est une des contraintes pouvant intervenir dans le choix de l'élément diffractant. C'est pourquoi, dans le graphique 3.4, la réflectivité présentée figure 3.3 est pondérée par la masse d'un cristal de  $10\times 10\text{ mm}$  de section et d'une épaisseur optimisée pour l'énergie utilisée.

Plus l'énergie est élevée plus les cristaux doivent être épais et donc lourds. Une lentille diffractant une énergie de  $850\text{ keV}$  sera ainsi toujours plus lourde que celle utilisée à  $200\text{ keV}$ . Il est également important de relativiser les bonnes performances du groupe iridium, platine et or à  $200\text{ keV}$ . Pour l'or, l'épaisseur optimale à  $200\text{ keV}$  n'est que de  $0.4\text{ mm}$ , ce qui rend plus complexe toutes manipulations et fixations sur la lentille.

A  $200\text{keV}$ , deux groupes se distinguent ; Les éléments à  $Z$  élevés ( $Z > 73$ ) qui bénéficient de leur très (trop ?) faible épaisseur. Le deuxième groupe est constitué des Nb, V, Cr, Fe et Cu.

Paradoxalement, le meilleur candidat à  $500\text{ keV}$  n'est autre que le plomb, qui est alors épais de  $2.3\text{ mm}$ . L'or présente également de bonnes performances avec une faible épaisseur ( $1.3\text{ mm}$ ). Suivent le tantale, le rhodium, le palladium et l'argent avec des épaisseurs plus importantes ( $3.6\text{ mm}$  pour l'argent).

A  $850\text{ keV}$ , les matériaux à  $Z$  élevés (Ir, Pt, Au) dominent toujours grâce à leurs fortes densités électroniques et leurs épaisseurs réduites. Celle-ci augmentent de façon continue avec l'énergie pour atteindre  $2.8\text{ mm}$  pour l'or.

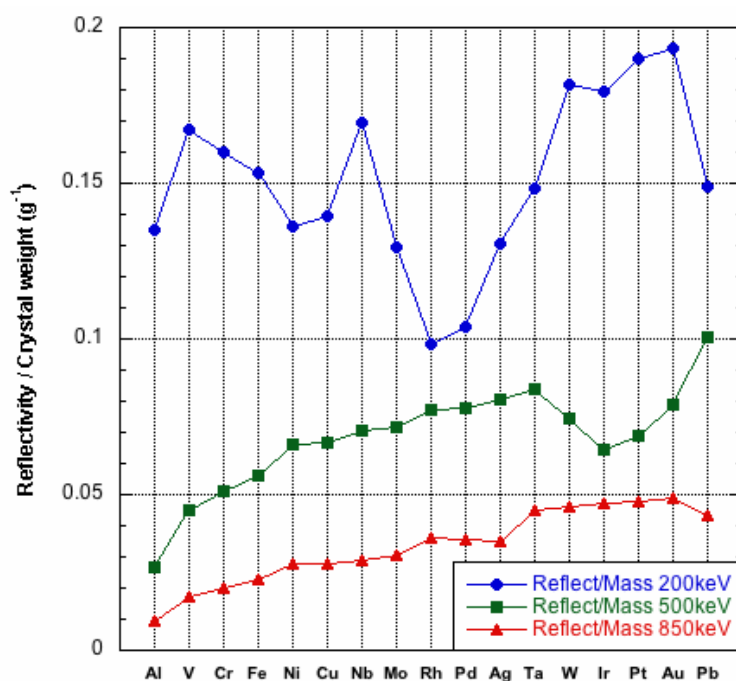


FIGURE 3.4 – Réflectivité des matériaux purs pour trois énergies différentes ; 200, 500, 850 keV pondérées par la masse du cristal (10x10mm, épaisseur optimale). Les matériaux sont classés par numéros atomiques croissants. La réflectivité est calculée pour une mosaïcité de 30 arcsec, une taille de cristallites de 60 microns.

#### 3.3.3 Propriétés mécaniques

La conception d'une lentille de Laue passe obligatoirement par une étape de fixation des cristaux sur la structure. Cette fixation peut se faire de différentes manières, mais implique toujours des contraintes mécaniques aux cristaux. La maille cristalline doit pouvoir résister à ces contraintes et garantir des performances constantes même après avoir subi les vibrations d'un lancement.

Les propriétés mécaniques des cristaux constituent donc une nouvelle contrainte applicable au choix des matériaux diffractant. Toutefois, puisque aucune méthode de fixation n'est encore défini, aucune limite basse de solidité n'est appliquée. Ainsi les indications qui suivent ont simplement pour objectif de comparer les matériaux entre eux.

La Figure 3.5 (à gauche) présente le module de Young des éléments présélectionnés. Le module de Young, est la constante qui relie la contrainte (de traction ou de compression) et la déformation pour un matériau élastique. Ce terme permet une comparaison relative de la rigidité des matériaux. Les plus rigides sont séparés en trois groupes, le Cr, Fe, Ni puis le Mo, Rh et enfin le W et Ir.

L'échelle de dureté de Mohs est également présentée Figure 3.5 (à droite). Cette échelle classe la dureté des matériaux entre 0 et 10, 0 étant le talc et 10 le diamant. Les matériaux les plus durs sont le V, Cr, Nb, Mo Rh, Ta, W et Ir.

Ainsi les matériaux, à la fois rigides et durs comme le Cr, Mo, Rh, W et Ir sont les cristaux les plus susceptibles de résister à leur fixation sur la lentille et aux vibrations d'un lancement. L'iridium en particulier allie de très bonnes propriétés cristallines, proche de l'or, avec de bien meilleurs propriétés mécaniques.

Toutefois, comme le montre la Figure 3.5 (en bas), la rigidité des matériaux va de pair avec une température de fusion élevée. Ainsi, la température de fusion du Tungstène est si élevée ( $> 3000^{\circ}\text{C}$ ), quelle rend, pour l'instant, impossible la fabrication d'un monocristal (Burkhanov et al, 2008).

Il est ainsi intéressant de constater que parmi tous les cristaux mosaïques mesurés (présentés dans le chapitre 4), ceux dont la fabrication s'est révélée compatible avec nos exigences (Cu, Ag, Au et Pb) ont tous une faible température de fusion, inférieure à  $1100^{\circ}\text{C}$ .

#### 3.3.4 Bilan

Tant que les conditions d'utilisation des cristaux ne sont pas définies (énergie, maintien des cristaux), il est difficile de pondérer les différentes contraintes étudiées plus haut. Le choix final du matériau dépendra ainsi du poids et des limites que l'on donnera aux différentes contraintes. Il est important de préciser que le choix des matériaux diffractant ne peut pas entièrement s'appuyer sur les performances théoriques présentées dans ce document. D'autres éléments au premier rang desquels figure la qualité du processus de croissance doivent être pris en compte. Il peut être ainsi plus intéressant d'utiliser un matériau aux performances théoriques plus faibles, mais fabriqué avec de plus petites cristallites (Fig. 3.1).

La Figure 3.6 présente l'évolution de la réflectivité en prenant pour exemple des matériaux parmi les plus prometteurs, en fonction de l'énergie. Ainsi le domaine d'utilisation du vanadium s'étend de 100 à 300 keV, celui du palladium de 300 à

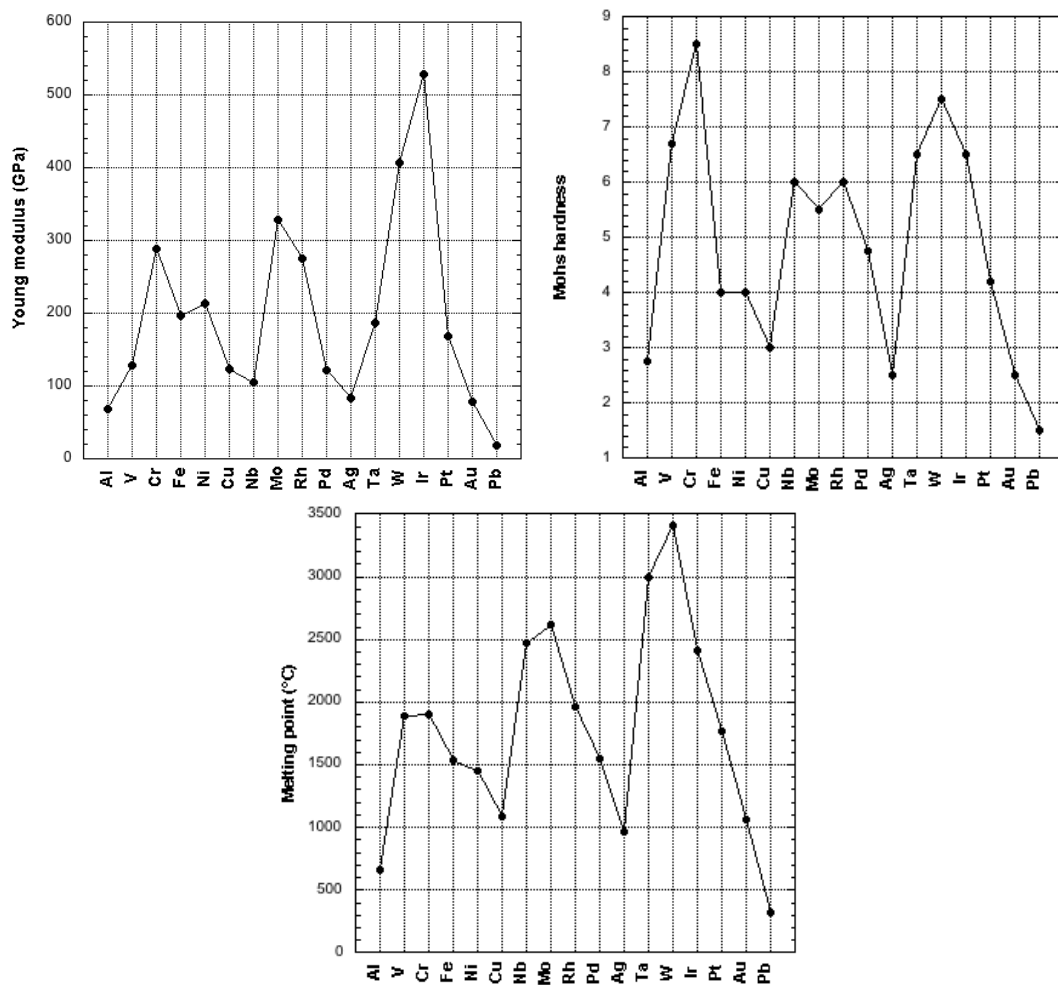


FIGURE 3.5 – A gauche : Module de Young des matériaux classés en Z croissant. A droite : dureté de Mohs en fonction des éléments en Z croissant. En bas : température de fusion des matériaux classés en Z croissant.

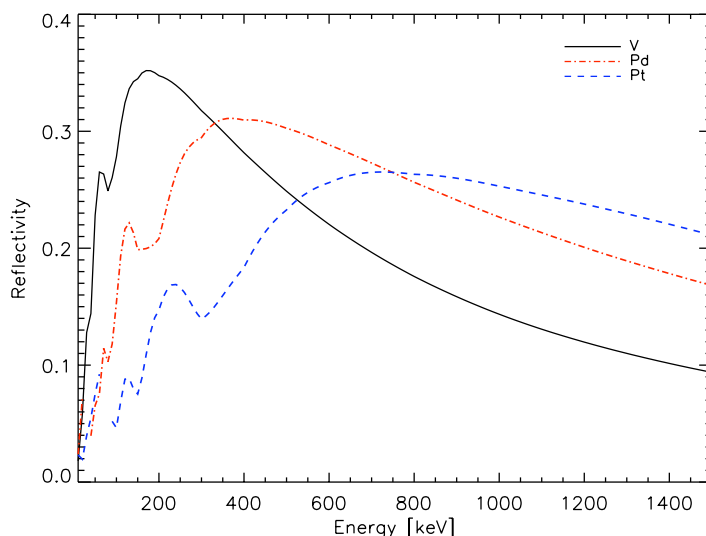


FIGURE 3.6 – Réflectivité en fonction de l'énergie des matériaux parmi les plus prometteurs. La réflectivité est calculée pour une mosaïcité de 30 arcsec, une taille de cristallites de 60 microns et une épaisseur optimale à chaque couple énergie – élément.

750 keV. Enfin le platine, et plus généralement les éléments à  $Z > 73$ , restent les meilleurs candidats pour les énergies supérieures à 750 keV.

## 3.4 Matériaux binaires

L'intérêt pour les matériaux plus complexes comme les céramiques, ou semi-conducteur binaires, est venu d'une volonté de profiter de l'expérience acquise en électronique ou mécanique sur des matériaux déjà très étudiés. Les performances de certains de ces matériaux (Fig. 3.7) n'ont rien à envier aux matériaux purs, surtout à basse énergie où ils sont plus à l'aise grâce à leur faible densité. La liste des matériaux présélectionnés n'est bien sûr pas exhaustive, mais présente un panel assez large de matériaux connus avec des  $Z$  moyens allant de 10, avec le carbure de silicium dans sa forme 3C (ou  $\beta$ ), à 50 avec le cadmium telluride. Tous ces matériaux partagent la même structure cristalline ; zinc blende. Dans cette structure cristalline, les plans (111) sont les plus performants, ce sont ceux qui seront utilisés au sein des simulations qui suivent.

### 3.4.1 Réflectivités

Soumis à un faisceau X de 200 keV, les matériaux binaires sélectionnés présentent une réflectivité comprise entre 30 et 35%, avec un faible avantage pour le gallium



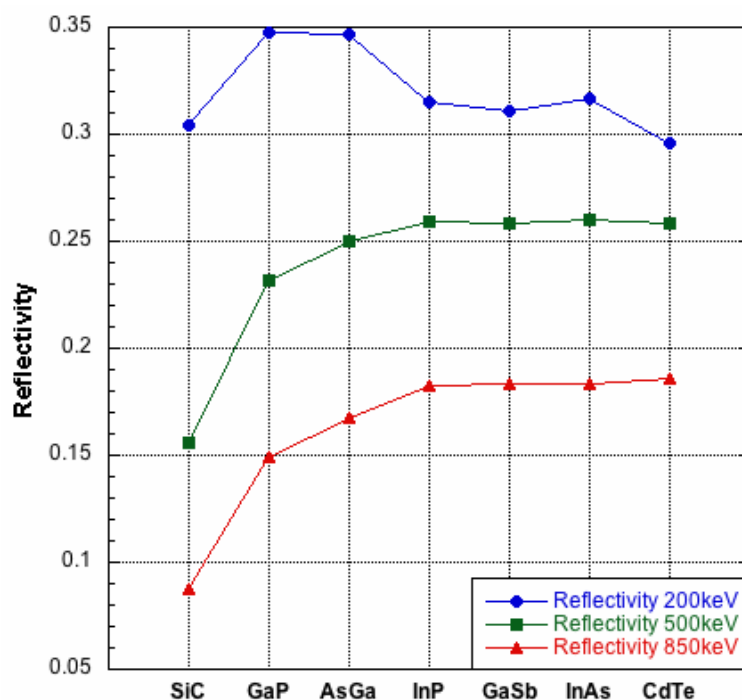


FIGURE 3.7 – Réflectivités des matériaux binaires présélectionnés à trois énergies différentes ; 200, 500 et 850 keV. La réflectivité est calculée pour une mosaïcité de 30 arcsec, une taille de cristallites de 60 microns et une épaisseur optimale à chaque couple énergie – élément.

phosphide (GaP) et l'arséniure de Gallium (GaAs) (Fig. 3.7). Ces performances se situent au niveau des meilleurs matériaux purs aux numéros atomiques inférieurs à 41.

A 500 keV, les matériaux à Z élevés prennent le dessus avec des performances constantes de  $Z \text{ moyen} = 32(\text{InP})$  à  $50(\text{CdTe})$ . A  $Z \text{ moyen}$  identique, l'InP et AsGa présentent toutefois des performances très différentes. Ainsi, le numéro atomique moyen ne peut pas être le seul paramètre à prendre en compte.

A 850 keV, on constate la même distribution des performances qu'à 500 keV, avec des réflectivités plus faibles d'environ 7%. Les performances sont ici limitées par l'absence de matériaux plus dense comme peuvent l'être l'or ou le plomb pour les cristaux purs. Les meilleurs matériaux binaires (InP, GaSb, InAs, CdTe) sont environ 8% moins performant que le groupe Ir, Pt et Au (26%).

## 3.4.2 Contrainte de poids et de tenue mécanique

Après avoir pondéré la réflectivité par le poids des cristaux (Fig. 3.8), l'InP, GaSb, InAs et le CdTe possèdent de meilleures réflexivités par gramme, à 200 keV, que les éléments purs (Fig. 3.4). Toutefois, ces performances s'effondrent très rapidement avec l'énergie.

La Figure 3.9 présente de gauche à droite la rigidité avec le module de Young et la dureté de Mohs des matériaux bi-éléments. Mis à part le SiC, ces matériaux

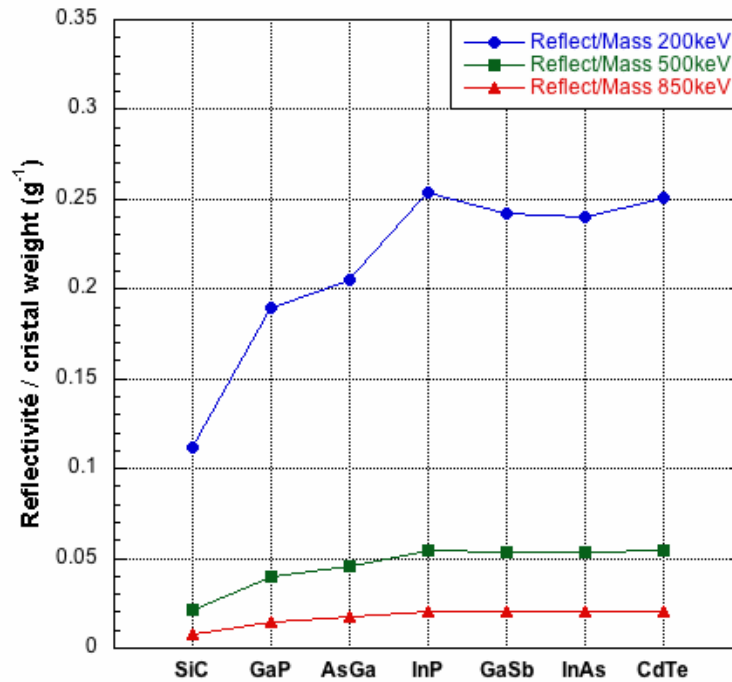


FIGURE 3.8 – Réflectivités des matériaux bi éléments pour trois énergies différentes ; 200, 500, 850 keV pondérées par la masse du cristal (10x10mm, épaisseur optimale). Les matériaux sont classés par numéros atomiques moyen croissants. La réflectivité est calculée pour une mosaïcité de 30 arcsec, une taille de cristallites de 60 microns.

possèdent une rigidité et une dureté relativement faible, du niveau de l'argent ou de l'or. Le CdTe semble particulièrement fragile avec une dureté de seulement 3 sur l'échelle de Mohs.

Ces matériaux ont toutefois l'avantage de bénéficier de températures de fusion basses, inférieures à 1500 °C, rendant leurs fabrications plus accessibles (Fig. 3.9 en bas).

#### 3.4.3 Bilan

Les différents matériaux binaires sélectionnés présentent des performances très proches les uns des autres (Fig. 3.10) avec un avantage pour le GaP à basse énergie si le poids n'est pas un critère de sélection. La faible densité des matériaux sélectionnés les cantonne aux faibles énergies ( $E \leq 500$  keV). La recherche de matériaux binaires plus denses pourrait toutefois atténuer cet handicap.

### 3.5 Cas des cristaux quasi-parfaits

Les cristaux quasi-parfaits sont fabriqués avec une structure cristalline sans défaut. Ces cristaux ne sont ainsi pas limités à 50% de réflectivité comme les cristaux mosaïques. Ils possèdent toutefois une bande passante en énergie très réduite,

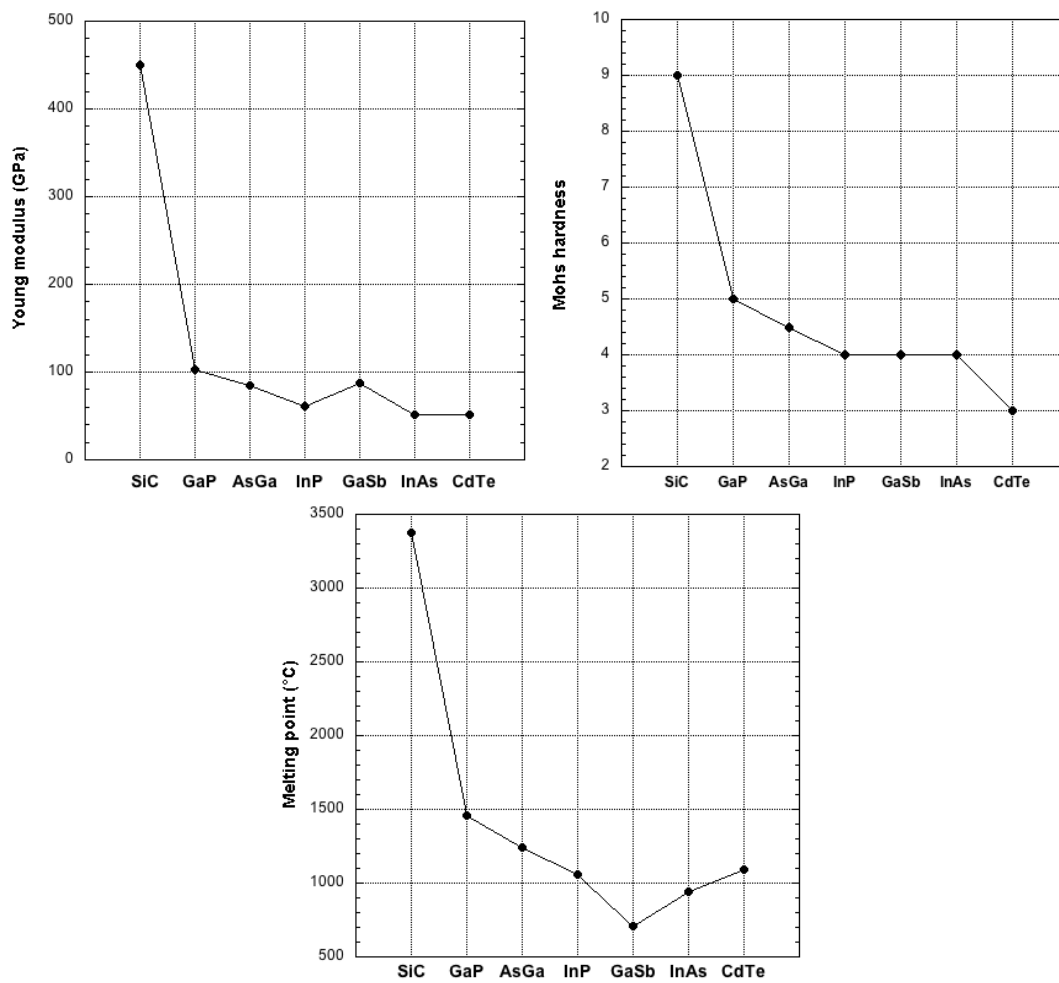


FIGURE 3.9 – A gauche : Module de Young des matériaux binaires classés en Z moyen croissant. A droite : Dureté de Mohs des matériaux binaires classés en Z croissant. En bas : Température de fusion des matériaux classés en Z moyen croissant.

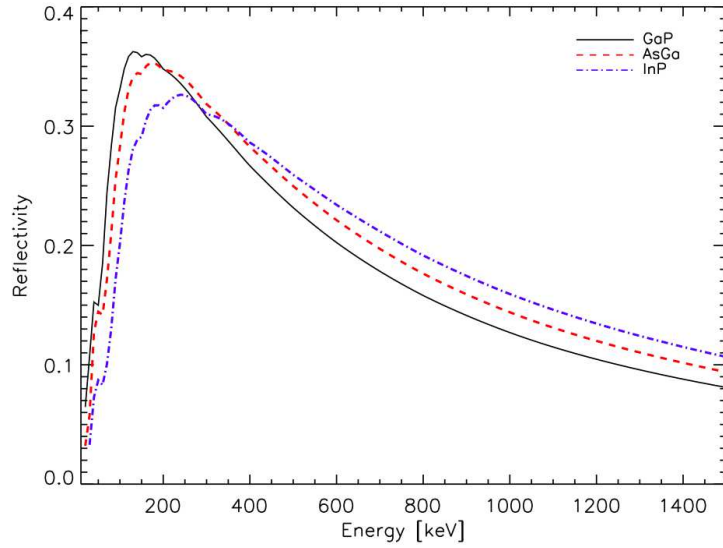


FIGURE 3.10 – Réflectivité en fonction de l'énergie des matériaux binaires sélectionnés. La réflectivité est calculée pour une mosaïcité de 30 arcsec, une taille de cristallite de 60 microns et une épaisseur optimale à chaque couple énergie – élément.

ce qui les rend inutilisables telle quel sur une lentille de Laue pour l'astrophysique (§2.2.5).

#### 3.5.1 Mosaïcité « artificielle »

La plupart des cristaux sont naturellement mosaïques, des défauts apparaissent inévitablement lors de leur croissance. Il est également possible de forcer les cristaux quasi-parfaits à devenir mosaïques (mosaïcité « artificielle »), par déformation plastique (Vrána et al, 2004), ou adjonction d'une faible quantité d'un élément perturbateur. On peut ainsi contrôler la bande passante finale, mais on retrouve alors les limitations inhérentes aux cristaux mosaïques ( $R < 50\%$ ). De plus, le contrôle précis du pourcentage d'élément perturbateur nécessite une attention toute particulière lors de la fabrication. Une telle technique a été utilisée sur la lentille CLAIRE (Abrosimov et al, 2005) avec environ 1% de silicium introduit dans des cristaux de germanium. De tels cristaux pourraient atteindre 35% de réflectivité à 200 keV pour une épaisseur de 3 mm.

#### 3.5.2 Cristaux à plans courbes

L'objectif de la courbure des cristaux est d'élargir la dispersion angulaire (par abus de langage, la mosaïcité) et la bande passante en énergie de cristaux parfaits ou quasi parfaits qui ne sont pas soumis à la limitation de 50% de réflectivité des cristaux mosaïques. La courbure des plans diffractant crée une bande passante de forme carrée (§2.4) qui induit une tache focale plus concentrée que la gaussienne des cristaux mosaïques, et donc une meilleur sensibilité.

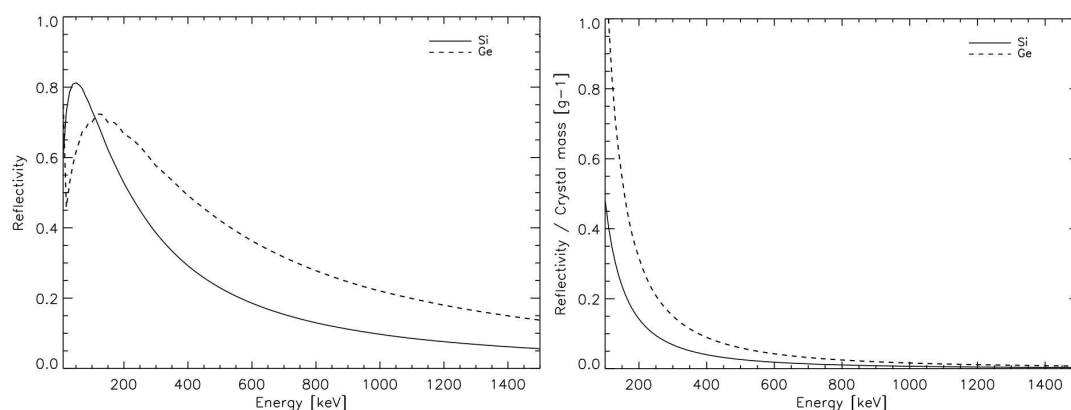


FIGURE 3.11 – A gauche, réflectivité du silicium et germanium à plans courbes. A droite, réflectivité pondérée par le poids d'un cristal. La réflectivité est calculée pour une dispersion angulaire de 30 arcsec et une épaisseur optimale à chaque couple énergie – élément.

Les techniques de courbure les plus utilisées sont,

- la courbure élastique par contrainte mécanique
- la courbure par gradient thermique (Smither et al, 2005)
- la courbure par gradient de concentration (Abrosimov, 2005)
- la courbure par gravure (relâchement de contraintes) (Bellucci et al, 2003)

Parmi ces techniques, seules les courbures par gradient de concentration et gravure ne nécessitent pas de dispositif autour du cristal. Ce sont les pistes à privilégier pour le remplissage à haute densité d'une lentille de Laue. D'autres méthodes sont également envisagées mais plus difficile à produire,

- la courbure par traitement de surface
- la courbure par variation de vitesse de découpe du cristal sur deux faces opposées

Pour apporter un réel gain de performance, les cristaux courbés doivent être quasi-parfaits, mais de tels cristaux sont peu nombreux, les plus courants étant le silicium et le germanium. Leur faible absorption les cantonne aux énergies les plus basses ( $E < 400 \text{ keV}$ ) utilisables par une lentille de Laue. Le graphique 3.11 (à gauche) présente les performances simulées du silicium et du germanium à plans courbes.

Le silicium courbé, avec une dispersion angulaire de 30 arcsec, pourrait atteindre une réflectivité de 80% à 50 keV. Au delà de cette énergie, les performances chutes rapidement pour devenir inférieures à celles des matériaux mosaïques à partir de 500 keV.

Le germanium courbe est une alternative très intéressante au silicium pour diffracter des rayonnements de plus hautes énergies. Sa plus forte densité lui permet en effet d'atteindre une réflectivité supérieures aux cristaux mosaïques jusqu'à 850 keV environ (de 70 à 25%).

Le silicium et le germanium ont également pour avantage de posséder une dureté supérieure à 6 sur l'échelle de Mohs.

## 3.6 Conclusion

Le travail présenté dans ce chapitre permet de prendre conscience de l'importance de la gamme en énergie sur le choix du matériaux diffractant. Aux plus basses énergies, autour de 200 keV, le silicium et germanium à plans courbes sont les plus performant. Ils allient une réflectivité supérieure à 50%, un poids contenu et de bonnes propriétés mécaniques. Toutefois, les échantillons de silicium courbe, dont les mesures sont présentées chapitre (Chap. 4) sont encore loin des performances simulées par le modèle PPK (§2.4).

Autour de 500 keV, les cristaux mosaïques purs de rhodium, palladium et argent sont les plus performant avec des réflectivités supérieures à 30%. Malgré leurs propriétés cristallines très proches, ces cristaux possèdent des qualités mécaniques très différentes. Le rhodium est à la fois le plus rigide et le plus dur, mais possède une température de fusion deux fois plus élevée que celle de l'argent, compliquant sa fabrication. Au delà des matériaux mosaïques, seul le germanium courbe pourrait en théorie être plus performant, avec une réflectivité supérieure à 40%.

Autour de 850 keV et au delà, seul les matériaux aux numéros atomiques supérieurs à 81 sont capables d'atteindre une réflectivité supérieure à 25%. Les cristaux d'iridium, de platine, d'or et de plomb sont ainsi parmi les plus performant avec des propriétés cristallines similaires. Le germanium courbe pourrait également atteindre une réflectivité de 25% à 850 keV, mais au prix d'une masse plus importante.

De manière plus générale, la grande majorité des cristaux sont naturellement mosaïques. Ils constituent ainsi un large vivier dans lequel on peut trouver des matériaux adaptés aux différentes énergies étudiées et avec des propriétés mécaniques très différentes. Il est ainsi possible de sélectionner un candidat selon les objectifs scientifiques et les contraintes techniques. Ni l'un ni l'autre n'étant défini pour le moment, aucun choix définitif ne sera fait ici.

Au delà des cristaux mosaïques, le germanium parfait à plans courbes paraît capable de surpasser les autres matériaux diffractant sur une large gamme d'énergie ( $100 < E < 900$  keV), au prix d'un poids légèrement plus élevé mais avec une bonne rigidité.

Toutefois, il est important de rappeler que les performances présentées dans ce chapitre ne sont comparable qu'à partir du moment où l'on est capable de fabriquer ces matériaux avec une qualité comparable ( $t, \Omega$ ). Ainsi, des cristaux à la croissance mieux maîtrisée seront généralement plus performant. Ce travail doit alors pouvoir indiquer pour quels cristaux la croissance cristalline doit être développée en priorité.



# 4

## Croissance et mesure de performance des cristaux

L'un des objectifs principaux de cette thèse est d'une part de poursuivre le développement des cristaux de cuivre et silicium-germanium (SiGe), en étudiant leur production à en pré-série, puis d'autre part de mener une étude prospective afin de trouver de nouveaux matériaux diffractant encore plus performants.

La première partie de ce chapitre doit permettre de mieux comprendre les résultats de mesures, présentés dans la seconde partie, en introduisant les paramètres cristallographiques recherchés, les techniques de production des cristaux, ainsi qu'une description des instruments de mesure.

La deuxième partie est consacrée aux résultats de mesure de différents matériaux, à commencer par les cristaux de cuivre et SiGe, déjà largement développés, puis d'autres échantillons, pas encore envisagés pour une utilisation sur une lentille de Laue, tel que l'or, l'argent ou le rhodium.



### 4.1 Spécifications recherchées

Cette première partie du chapitre doit permettre de définir les spécifications des cristaux, à partir desquelles la qualité des échantillons mesurés sera comparée. Ces paramètres ne sont pas définitifs et dépendent fortement de la conception de la lentille (distance focale, bande passante en énergie, nombre de cristaux).

#### 4.1.1 Section

La section des cristaux définit la surface géométrique exposée aux rayonnements X-gamma. Dans le cas d'une source monochromatique, la taille du spot focal est directement définie par la section des cristaux diffractant (§1.5). Ainsi, la concentration du flux diffracté et la sensibilité qui en découle tendent vers l'utilisation de cristaux de faible taille, autorisant une orientation plus fine des plans de diffraction. Toutefois, la réduction de la section des cristaux provoque une forte augmentation du nombre d'éléments sur la lentille, la rendant plus complexe à réaliser. L'utilisation de petit cristaux augmente également la fraction de surface inutilisée de la lentille en multipliant les espaces inter-cristaux, réduisant ainsi sa surface efficace. De plus, la découpe des cristaux, quelle soit électro-chimique ou mécanique, perturbe leurs couches superficielles sur une épaisseur variable dépendant du matériaux et de la vitesse de découpe. La production de petits cristaux diminue alors la fraction de volume utile et la surface efficace de la lentille.

Les sections demandées dans ce chapitre sont issues d'un compromis aboutissant à des cristaux de  $15 \times 15 \text{ mm}^2$  de coté.

#### 4.1.2 Epaisseur

**Cristaux mosaïques** L'épaisseur  $T_0$  des cristaux mosaïques résulte d'un compromis entre l'absorption et l'efficacité de diffraction, toutes deux croissantes avec l'épaisseur. Une épaisseur optimisant la réflectivité  $R^{max}$  peut ainsi être déterminée analytiquement en dérivant l'expression de la réflectivité au pic (théorie dynamique) (§1.5) par rapport à l'épaisseur du cristal :

$$\frac{dR^{max}}{dT_0} = 0$$

On obtient alors :

$$T_0 = \frac{\ln \left( \frac{2W(0) Q_{dyn}(t)}{\mu} + 1 \right)}{2W(0) Q_{dyn}(t)} \quad (4.1)$$

$$= \frac{1}{\mu} \frac{\ln \left( 4\sqrt{\ln 2} \pi^{3/2} \frac{d_{hkl}}{\Omega \mu \Lambda_0^2 \cos \theta_B} f(A) + 1 \right)}{4\sqrt{\ln 2} \pi^{3/2} \frac{d_{hkl}}{\Omega \mu \Lambda_0^2 \cos \theta_B} f(A)} \quad (4.2)$$

L'épaisseur optimale varie ainsi en fonction du matériau (avec  $d_{hkl}$  et  $\mu$ ), de l'énergie (avec  $\Lambda_0$ ), de la mosaïcité ( $\Omega$ ) et de la taille des cristallites (avec  $f(A)$ ).

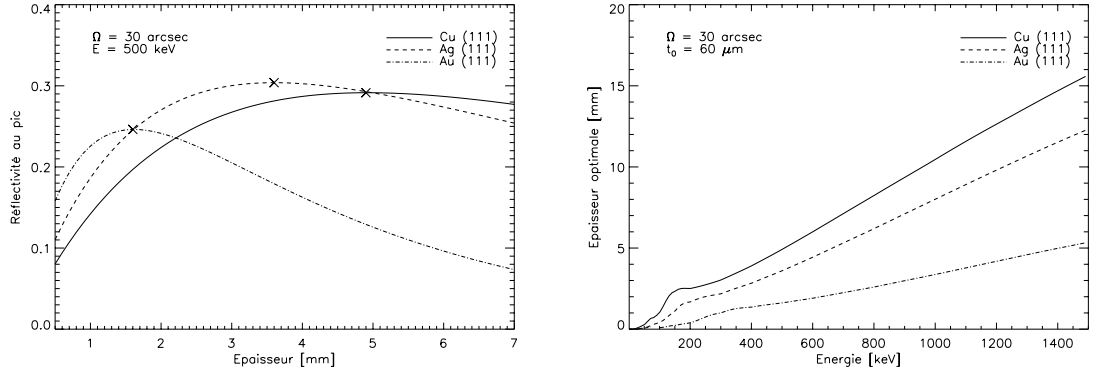


FIGURE 4.1 – Influence de l'épaisseur des cristaux sur la réflectivité au pic (à gauche) et influence de l'énergie sur l'épaisseur optimale des cristaux (à droite) de trois cristaux mosaïques (cuivre, argent et or). Les croix représentent l'épaisseur maximisant la réflectivité.

La Figure 4.1 présente l'épaisseur de trois cristaux mosaïques (cuivre, argent et or) maximisant la réflectivité au pic (à gauche) et l'influence de l'énergie sur l'évolution de ces épaisseurs (à droite).

La forme relativement plate des courbes de réflectivité permet également de diminuer l'épaisseur des cristaux, et ainsi économiser de la masse, sans détériorer les performances. Il est ainsi possible de réduire jusqu'à 15% l'épaisseur des cristaux en prenant 99% de la réflectivité.

**Cristaux courbes** Dans le cas des cristaux courbes, l'épaisseur  $T_0$  est directement liée à l'angle total de courbure  $\Omega$  (Frontera and Von Ballmoos, 2010), correspondant à la mosaïcité des cristaux mosaïques, et la courbure des plans diffractant ( $C_c$ ) :

$$C_c = \frac{1}{R_c} = \frac{\Omega}{T_0} \quad (4.3)$$

Il est ainsi possible de dériver l'expression de la réflectivité au pic (c.f. §2.4.2) par rapport à la courbure des plans réticulaires :

$$\frac{dI_h}{dC_c} = 0$$

$$C_c^{opt} = \frac{\pi^2 d_{hkl}}{\Lambda_0^2 \ln \left( 1 + \frac{\pi^2 d_{hkl} \cos \theta_B}{\Lambda_0^2 \mu \Omega} \right)} \quad (4.4)$$

$$T_0^{opt} = \frac{\Omega \Lambda_0^2}{\pi^2 d_{hkl}} \ln \left( 1 + \frac{\pi^2 d_{hkl} \cos \theta_B}{\Lambda_0^2 \mu \Omega} \right) \quad (4.5)$$

Ainsi l'épaisseur optimale des cristaux courbes dépend de la dispersion angulaire souhaitée ( $\Omega$ ), du matériaux (avec  $d_{hkl}$  et  $\mu$ ) et de l'énergie, via la longueur d'extinction ( $\Lambda_0$ ).

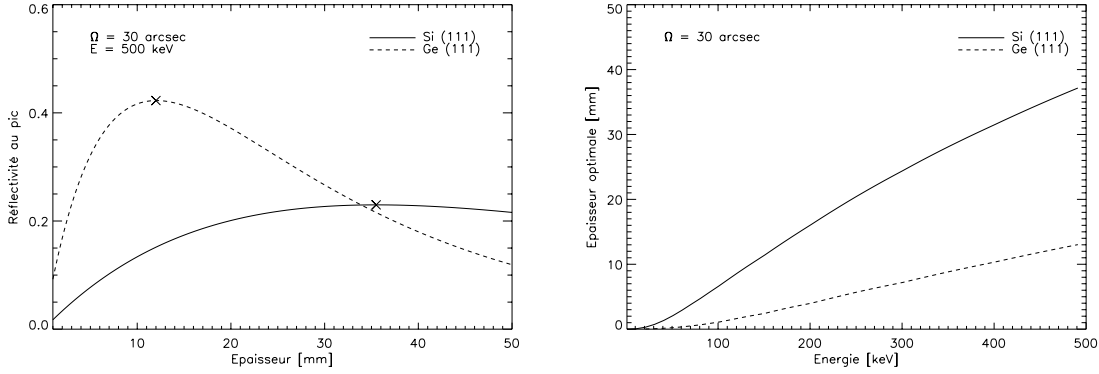


FIGURE 4.2 – Influence de l'épaisseur des cristaux sur la réflectivité au pic (à gauche) et influence de l'énergie sur l'épaisseur optimale des cristaux (à droite) de deux cristaux courbes (silicium et germanium). Les croix représentent l'épaisseur maximisant la réflectivité.

La Figure 4.2 (à gauche) présente la réflectivité maximale en fonction de l'épaisseur des cristaux de silicium et germanium, courbés afin d'obtenir une largeur à mi-hauteur des RCs de 30 arcsec. A droite est présentée l'évolution de l'épaisseur optimale des cristaux de silicium et germanium en fonction de l'énergie diffractée.

Tout comme les cristaux mosaïques, il est possible d'économiser de la masse en réduisant très faiblement la réflectivité, grâce à la forme très plate du maximum de réflectivité (Fig. 4.2 à gauche).

### 4.1.3 Mosaïcité

Afin de simplifier la conception de la lentille de Laue, nous avons choisi de disposer les cristaux sur des anneaux concentriques (c.f. §1.5). Cette disposition oblige toutefois les cristaux à diffracter une bande passante en énergie ( $\Delta E_{fwhm}$ ) suffisamment large pour que les contributions de deux anneaux successifs se recouvrent pour former une bande passante globale continue. Cette contrainte qui s'applique aux lentilles à bandes spectrales larges, induit une valeur minimale sur la mosaïcité ( $\Omega$ ) des cristaux :

$$\Delta E_{fwhm}(\Omega) \gg E_i - E_{i+1} \quad (4.6)$$

$$\gg E_i \frac{r_{i+1} - r_i}{r_i} \quad \text{avec } r_{i+1} - r_i \ll r_i \quad (4.7)$$

où  $r$  et  $i$  sont respectivement le rayon et le numéro de l'anneau et  $E$  l'énergie diffractée correspondante.

La relation de Bragg nous donne une première approximation de  $\Delta E_{fwhm}$  :

$$\Delta E_{fwhm} \approx 2d_{hkl}\Omega \frac{E^2}{hc} \quad (4.8)$$

Expression à partir de laquelle on peut déterminer la contrainte sur  $\Omega$  :

$$\Omega \geq \frac{hc}{2 d_{hkl} E_i} \frac{(r_{i+1} - r_i)}{r_i} \quad (4.9)$$

$$\geq \frac{r_{i+1} - r_i}{2f} \quad (4.10)$$

A titre d'exemple, pour une focale de 100 m et une distance entre deux anneaux de 15 mm la mosaïcité des cristaux, qu'ils soient mosaïque ou courbe, doit être supérieure à environ 15 arcsec, pour une énergie supérieure à 100 keV.

Comme l'augmentation de la mosaïcité fait rapidement décroître la réflectivité des cristaux (c.f. §2.3), il paraît plus avantageux de sélectionner des cristaux possédant une mosaïcité égale à sa limite inférieure. Néanmoins, une mosaïcité très faible complique l'alignement des cristaux sur la lentille et rend plus difficile la croissance des cristaux mosaïques.

Le choix de la mosaïcité résulte donc d'un compromis entre les performances de l'instrument et sa faisabilité technique. Selon les objectifs scientifiques et la focale sélectionnée, une gamme allant de 30 arcsec à 1 arcmin a été utilisée au cours de cette thèse.

## 4.2 Production des cristaux

---

### 4.2.1 Croissance Bridgman

La technique de croissance Bridgman a été utilisée par le groupe monochromateur de l'Institut Laue Langevin (ILL, Grenoble, France) pour fabriquer l'ensemble des cristaux de cuivre mosaïque étudiés dans la suite de ce chapitre. Le rôle principal de ce groupe, dirigé par Pierre Courtois, est de produire des macro-cristaux ultra purs de cuivre et de germanium pour la réalisation de monochromateurs à neutrons.

Lors de la croissance Bridgman, du cuivre de grande pureté (99,99%) est fondu à l'intérieur d'un four à gradient de température ( $3^\circ\text{C}/\text{cm}$ ). Le creuset, contenant le cuivre, est alors lentement descendue (7mm/h) dans une zone plus froide du four afin de solidifier et faire croître le cristal. Cette croissance débute sur un germe de cuivre situé à la base du creuset, dont l'orientation va déterminer celle du cristal (Figure 4.3).

La même technique de croissance a été utilisée par la société Mateck (Allemagne) pour la production des cristaux de plomb mosaïques, étudiés dans la suite de ce chapitre.

### 4.2.2 Croissance Czochralski

La technique de croissance Czochralski a été utilisée par la société Mateck pour produire les cristaux mosaïques d'argent, d'or et de platine étudiés en fin de chapitre. Cette technique est également à la base de la croissance des cristaux semi-conducteurs (Si, Ge) mosaïques et courbes, produits par Nikolay Abrosimov de l'Institut für Kristallzüchtung (IKZ, Berlin, Allemagne).

## CHAPITRE 4. CROISSANCE ET MESURE DE PERFORMANCE DES CRISTAUX

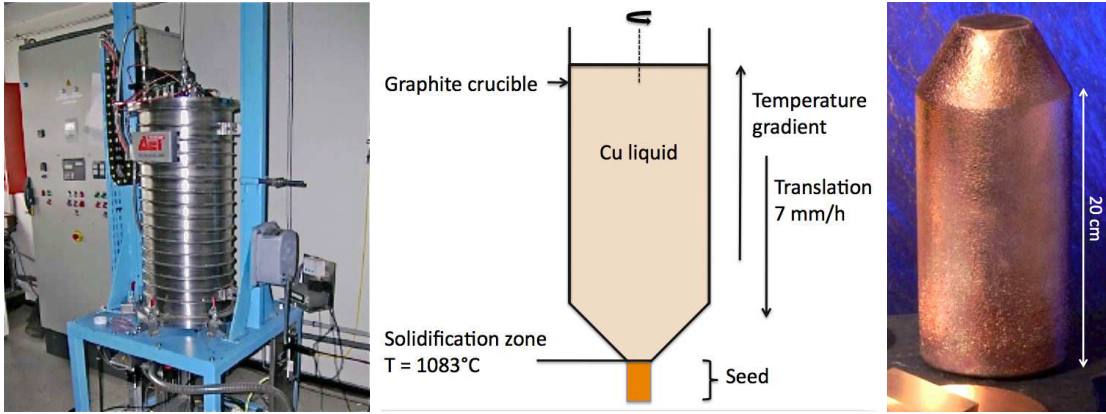


FIGURE 4.3 – A gauche : Photographie d’un four Bridgman de l’ILL. Au centre : Schéma de principe de la croissance Bridgman. A droite : Photographie d’une boule de cuivre produite à l’ILL. La partie utilisable mesure 20 cm, tandis que la partie supérieure avec le germe a été découpée.

Lors de la croissance Czochralski, l’ensemble de la matière est fondu dans un creuset tandis qu’un germe cristallin est posé à sa surface. La cristallisation se produit à l’interface solide liquide selon l’orientation définie par le germe. Celui-ci est alors lentement tiré vers le haut ( $\sim 10\text{mm/h}$ ) afin d’accompagner la croissance du cristal qui peut atteindre plusieurs centimètres de diamètre.

Dans le cas spécifique de la production de cristaux de silicium courbes, une faible concentration de germanium est ajoutée au silicium en fusion. Ce dernier cristallise préférentiellement sur le germe de silicium, augmentant la concentration de germanium dans le creuset durant la croissance. Grâce à la forte miscibilité des deux éléments, ce procédé crée un gradient de concentration de germanium le long de l’axe de croissance du cristal. Il abouti alors à une augmentation de la distance inter-réticulaire et une courbure sphérique des plans perpendiculaires à l’axe de croissance (Figure 4.4).

Si la concentration de germanium reste faible dans le cristal, le rayon de courbure  $R_c$  est approximativement proportionnel au gradient de concentration de germanium  $\nabla C_{Ge}$  :

$$\nabla C_{Ge} [\% \text{ cm}^{-1}] \approx \frac{25}{R_c [m]} \quad (4.11)$$

### 4.2.3 Découpe par élethro-érosion

Tous les mono-cristaux mosaïques produits par les techniques Bridgman ou Czochralski sont découpés par électro-érosion pour obtenir les cristaux de la taille souhaitée. La découpe se fait le long des plans diffractant avec une précision au mieux de 1 arcmin. Comme nous le verrons dans la suite de ce chapitre (c.f. §4.5), cette étape s’est révélée cruciale pour l’obtention de cristaux aux faibles mosaïcités. Le courant dans le fil de découpe doit être suffisamment faible pour ne pas altérer la maille cristalline, cela réduit ainsi la vitesse de découpe à environ 1mm/min dans le cas du cuivre provenant de l’ILL.

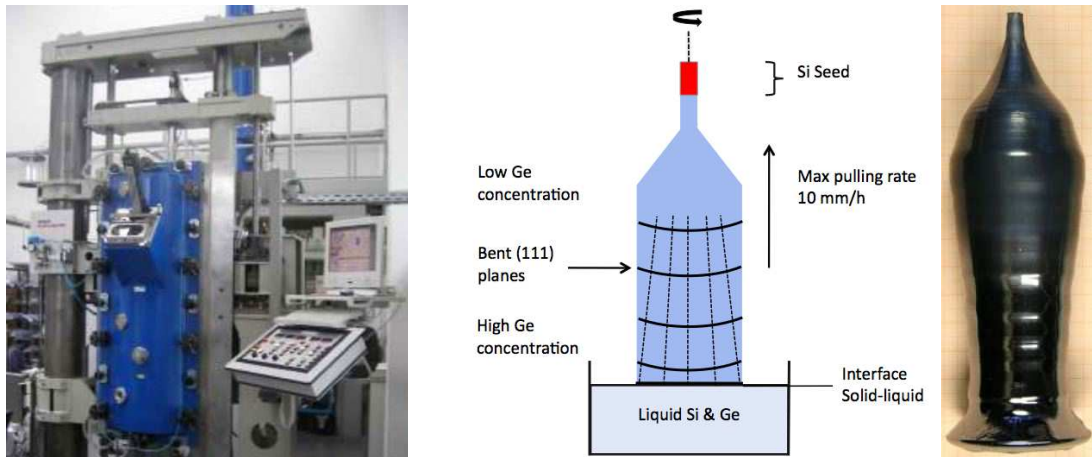


FIGURE 4.4 – A gauche : Photographie d’un four Czochralski de l’IKZ. Au centre : Schéma de principe de la croissance d’un mono-cristal de silicium-germanium courbe par la technique Czochralski. A droite : Photographie d’une boule de silicium-germanium courbe produite à l’IKZ.

Malgré ces précautions, une faible épaisseur endommagée est inévitable, mais celle-ci peut être retirée par une attaque acide.

## 4.3 Instruments de mesure

### 4.3.1 Principe de mesure

L’ensemble des mesures présentées dans cette thèse sont issues des expérimentations effectuées sur deux instruments différents situés sur le Polygone Scientifique de Grenoble (Figure 4.5). Le plus utilisé fut GAMS-5 au sein du réacteur nucléaire scientifique de l’ILL et le second, ID15-A au synchrotron Européen de Grenoble (ESRF).

Les mesures ont pour objectif de caractériser les différents cristaux mis à notre disposition, que ce soit leur efficacité de diffraction, leur mosaïcité ou l’orientation des plans diffractant. Pour cela nous mesurons des ”Rocking Curves” (RC), des courbes d’intensité du faisceau transmit ou diffracté en fonction de l’angle d’incidence sur le cristal (Figure 4.6).

Les RCs permettent de calculer l’efficacité de diffraction du cristal grâce à l’intensité du pic de diffraction et du niveau de référence (intensité transmise hors diffraction  $I_0 - I_{abs}$ ). Il est alors possible de remonter à l’intensité du faisceau incident ( $I_0$ ), connaissant l’absorption dans le cristal et calculer sa réflectivité (ratio des intensités diffractée sur incidente). Dans le cas de cristaux mosaïques, le modèle de Darwin peut être ajusté sur la forme du pic de diffraction afin d’estimer la mosaïcité et la taille des cristallites moyenne du cristal, proche de la largeur à mi-hauteur.

L’expérience acquise au cours de précédentes mesures ont mis en évidence l’influence de l’énergie utilisée sur les paramètres mesurés tel que l’efficacité de diffraction mais aussi la mosaïcité. Ainsi, afin d’avoir une vision claire de l’utilisation possible des cristaux sur une lentille de Laue, ceux-ci doivent de préférence être mesurés à l’énergie pour laquelle leur épaisseur est optimisée.



FIGURE 4.5 – Vue aérienne du site de l'ILL et de l'ESRF à Grenoble (France). L'enceinte cylindrique du réacteur de l'ILL et l'anneau du synchrotron de l'ESRF sont respectivement visibles en haut et en bas de l'image.

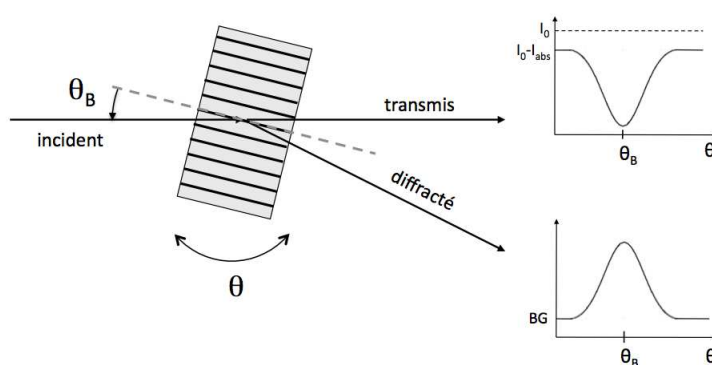


FIGURE 4.6 – Schéma de principe de la mesure des "rocking curves" (RC) en transmission et diffraction. L'intensité des faisceau est mesurée en faisant varier l'angle d'incidence ( $\theta$ ) autour de l'angle de Bragg ( $\theta_B$ ).  $I_0$  représente l'intensité du faisceau incident,  $I_{abs}$  l'intensité absorbée dans le cristal et BG le bruit de fond.

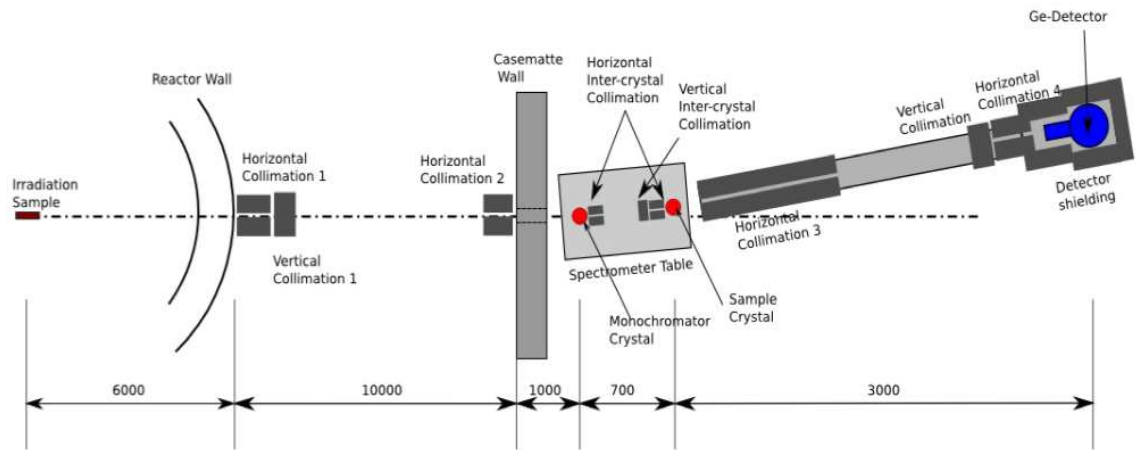


FIGURE 4.7 – Schéma de la ligne de GAMS-5, de la source de rayonnement gamma (à gauche) au détecteur germanium (à droite) (source Michael Jentshel).

### 4.3.2 ILL GAMS-5

GAMS-5, pour "GAMma Spectrometer", est un spectromètre à double cristaux situé dans le hall expérimental du réacteur à neutrons de l'ILL, sur la ligne de faisceau PN-3. Cet instrument est basé sur GAMS-4, situé sur la même ligne, et décrit par Kessler Jr. (2001). La fission de l'uranium 235 dans le coeur du réacteur produit une grande quantité de neutrons dont une partie est absorbée par une cible d'erbium, gadolinium ou de chlore. Après capture neutronique, cette cible devient une source de raies gamma nucléaires utilisables pour nos mesures.

L'une des raies, ainsi qu'une portion angulaire du faisceau issu de la cible est sélectionnée par un monochromateur (généralement en silicium parfait) puis envoyée sur l'échantillon étudié. Selon l'orientation de ce dernier, le faisceau monochromatique et parallèle est entièrement transmis ou partiellement diffracté. Un détecteur de germanium mobile, pouvant se placer en position de transmission ou de diffraction, permet alors de mesurer alternativement l'intensité et l'énergie des deux faisceaux (Figure 4.7).

Les deux cristaux, le monochromateur et l'échantillon, sont placés sur des goniomètres dont l'orientation est mesurée par deux interféromètres de Michelson avec une précision de 0,0002 arcsec (Fig. 4.8).

### 4.3.3 ESRF ID-15-A

L'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) est situé tout près du réacteur de l'ILL sur le polygone scientifique de Grenoble. Ce synchrotron de troisième génération est l'un des trois plus puissants au monde avec SPRING-8 (Japon) et l'APS (Etats Unis). Il est constitué d'un anneau de stockage de 844 m de circonférence dans lequel circulent des électrons ultra-relativistes. Un faisceau synchrotron intense, allant des micro-ondes aux X-durs, est alors émis lorsque ces électrons traversent les aimants de courbure et les onduleurs (série d'aimants forçant les électrons à suivre une trajectoire en "zigzag"). Quarante lignes de faisceaux sont



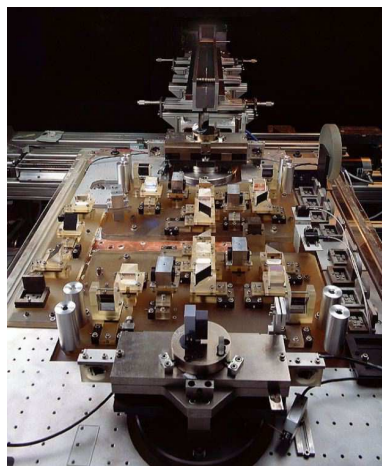


FIGURE 4.8 – Photographie de la table du spectromètre (Fig. 4.7) de l'instrument GAMS-5 de l'ILL. Le faisceau  $\gamma$  arrive par le bas, passe par le monochromateur, puis par l'échantillon avant d'entrer dans la collimateur. Le système optique, situé au centre, est utilisé par les deux interféromètres de Michelson pour mesurer l'angle de rotation des deux cristaux.

réparties sur le pourtour de l'anneau, dont la ligne ID-15 dédiée aux expérimentations utilisant les plus hautes énergies émises par le synchrotron (environ 700 keV).

L'instrument ID-15-A est l'un des trois instruments situés sur cette ligne. Un double monochromateur (généralement en silicium ou germanium parfait) permet de sélectionner une énergie particulière parmi le faisceau blanc du synchrotron. Celui-ci peut être courbé mécaniquement afin d'augmenter sa bande passante ainsi que le flux, au détriment de la résolution angulaire.

Tout comme sur GAMS-5, l'intensité des faisceaux transmis et diffractés sont enregistrés via un détecteur germanium, en fonction de l'angle d'incidence du faisceau, provenant des monochromateurs, sur l'échantillon cristallin (Figure 4.9 et 4.10).

Le principal avantage de ID-15-A par rapport à GAMS-5 est la forte intensité du faisceau (en dessous de 700 keV) qui permet de réduire sa taille à quelques dizaines de microns de côté. Ce faisceau très fin permet de mesurer des variations très localisées des paramètres cristallins.

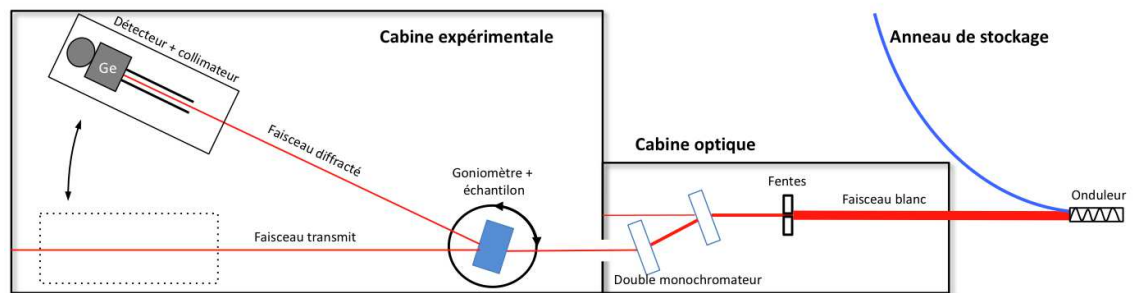


FIGURE 4.9 – Schéma de la ligne de ID-15-A, de l'anneau de stockage des électrons (à droite) au détecteur germanium (à gauche). L'onduleur, composé d'une série d'aimants aux polarisation alternées, émet un faisceau blanc intense de rayonnement synchrotron. Les deux monochromateurs peuvent être courbés pour modifier leur bande passante.

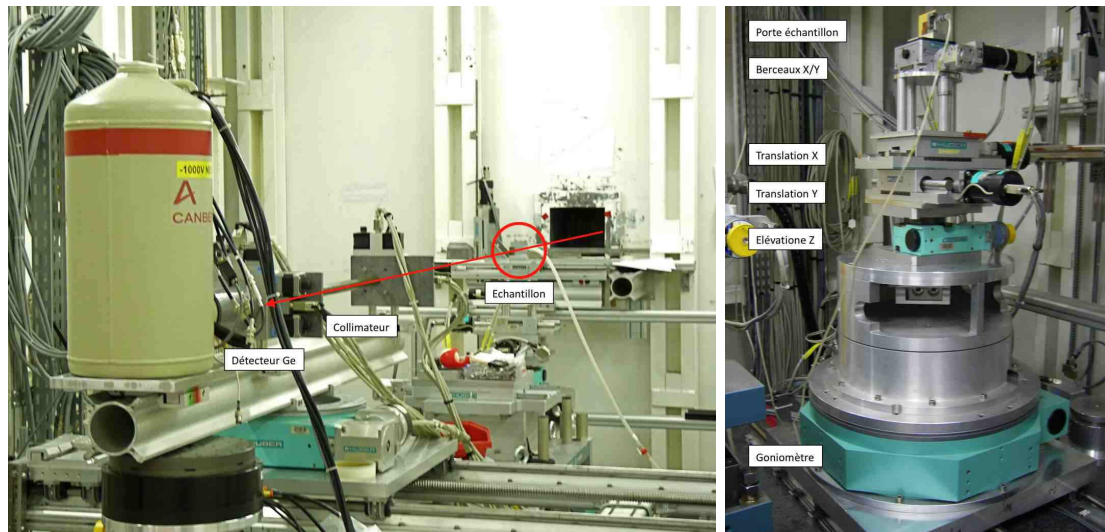


FIGURE 4.10 – A gauche : Photographies de la salle d'expérimentation avec le porte échantillon encadré en rouge, traversé par le faisceau X représenté par la ligne rouge. Le détecteur de germanium est caché par le système de refroidissement et le réservoir d'azote liquide. A droite : Photographie du porte échantillon surmontant le goniomètre et les platines de déplacement. Le porte échantillon est relié à une pompe à vide par un tuyau afin de maintenir les cristaux par aspiration.

### 4.4 Etude ESA de faisabilité des cristaux de cuivre mosaïques et SiGe courbes

---

L'article intitulé "Cu and SiGe gradient crystal productions and measurements for a Laue lens application", est inclu dans la suite de ce chapitre afin de présenter les résultats d'une étude financée par l'Agence Spatiale Européenne. Cette étude a permis de déterminer le niveau de TRL (Technology Readiness Level) de la fabrication et découpe des cristaux de cuivre mosaïques et silicium-germanium courbes (SiGe).

15 cristaux de cuivre et 26 cristaux de SiGe ont été produits et caractérisés sur GAMS-5 à l'ILL. Ces mesures ont permis de calculer la mosaïcité et la réflectivité des plan cristallins 111 de l'ensemble des cristaux, ainsi que leur homogénéité.

# Cu and SiGe gradient crystal productions and measurements for a Laue lens application

J. Rousselle · P. von Ballmoos · M.  
Jentschel · N. Abrosimov · N. Barrière · P.  
Courtois · G. Roudil

Received: date / Accepted: date

**Abstract** As a step towards demonstrating the feasibility of a Laue lens for a future gamma-ray mission, a small series of prototype crystals has been produced and tested. The study has been conducted in the framework of an ESA R&D program and included two different types of diffraction materials : Copper mosaic crystals optimized primarily for energies at 511 keV and 847 keV, and Silicon-Germanium gradient crystals optimized for energies at 300 keV and 511 keV. The measurements of the crystal performance were carried out at the GAMS-5 beamline at the ILL reactor in Grenoble. About 25% of the Cu crystals and 70% of the Si-Ge crystals turned out to have mean mosaicities within the requested range of 20-40 arcseconds. With reflectivities of roughly 25% at 300 keV, 20% at 500 keV and still 20% above 800 keV the bulk of the crystals were within 60-80% of their theoretically achievable diffraction efficiencies. We discuss the performance of the crystals and the reproducibility of their growth process.

**Keywords** Laue lens · Bragg diffraction · copper crystals · silicon-germanium gradient crystals

## 1 Introduction

The soft gamma-ray domain is currently studied by ESAs INTEGRAL observatory. Its main instruments, SPI (Roques et al, 2003) and IBIS (Ubertini et al, 2003) use coded masks to observe the mostly non-thermal phenomena of the violent high-energy Universe. However, due to the background induced by cosmic rays in their large area detectors, the sensitivity of such instruments is intrinsically limited. A Laue lens is capable to push back these limitations thanks to a large collection area focusing onto a small focal plane detector. Gamma ray concentration via a Laue lens permits an unprecedented leap in sensitivity with respect to current missions.

A Laue lens consists of a large number of crystals disposed on concentric rings. Each crystal diffracts a part of the incident gamma-rays onto a common focal spot via

---

J. Rousselle  
CESR, 9 avenue du Colonel Roche 31028 Toulouse  
Tel.: +33-061-557780  
E-mail: julien.rousselle@cesr.fr

**Table 1** Crystal requirements for a representative mission concept. The indicated reflectivity represents the theoretical maximum (shown equations 1 and 4) simulated with a constant crystallite size of 40 microns (section 2.1).

| Material  | SiGe    |      | Cu   |      |      |
|---|---------|------|------|------|------|
| Diffracting planes [hkl]                            | 111     |      | 111  |      | 200  |
| Diffracted energy [keV]                             | 300     | 511  | 511  | 847  |      |
| Required Mosaicity [arcsec]                         | 30 ± 10 |      |      |      |      |
| Optimal thickness to achieve peak reflectivity [mm] | 23      | 36   | 4.5  | 8.6  | 9.7  |
| Theoretically achievable peak reflectivity          | 0.37    | 0.21 | 0.30 | 0.22 | 0.19 |
| Target peak reflectivity XX                         | 0.27    | 0.16 | 0.23 | 0.17 | 0.15 |

Bragg-diffraction. The overall lens performance therefore depends on each diffracting element. The principles of Laue diffraction lenses are described in Halloin and Bastie (2005) and Halloin et al (2003). In this work we present the results of an ESA funded R&D program with the objective of studying the technical readiness level (TRL) of copper and silicon-germanium crystals, namely crystal quality and homogeneity as well as the reproducibility of the growth process.

In the second chapter of this article, the requirements for Laue lens crystals are presented. After a short introduction of the growth process for Cu and Si(Ge) crystals in the third chapter, we present the GAMS5 beamline at ILL, the instrument we have used to characterize our crystals. The fifth and last chapter is dedicated to the measured crystal performance and their discussion.

## 2 Crystal requirements

Sensitivity is the foremost necessity of any future gamma-ray telescope. The critical performance parameters for a Laue Lens are therefore its effective area and focal spot characteristics (i.e. the volume relevant for the instrumental background) as function of energy. The requirements for the individual diffraction crystals are presented Table 1 - they are derived from the desired instrumental performances. For the present study it is assumed that the Laue lens must diffract at energies from 300 to 900 keV. Considering the availability of high reflectivity crystal with sufficient homogeneity (90% - defined as the ratio of the crystal collection surface fulfilling the requirement reflectivity) we have selected readily available Copper and SiGe CDP (Curved Diffraction Plane) crystals.

### 2.1 Copper crystal thickness

The crystal thickness shown in Table 1 is calculated from diffraction models (equations 1 and 4) to optimize the peak reflectivity, i.e. maximizing diffraction efficiency (roughly proportional to the number of planes "seen" by a photon i.e. the thickness) while minimizing absorption (thickness).

The copper mosaic crystals are described by the Darwin's model (Darwin, 1922) as a mosaic of crystalline blocks (crystallites). Each block is separated from the surrounding blocs by faults and cracks. For our Laue lens, a well defined angular spread of the crystallite orientation, called mosaicity, is needed to diffract an energy bandpass and simplify the crystal alignment.

The peak reflectivity, i.e. the ratio of the diffracted over the incident intensities, including absorption in the crystal of thickness  $T_0$  is defined by Zachariasen (1945) :

$$R^{max} = \frac{1}{2} (1 - e^{-\alpha}) e^{-\mu T_0}, \quad (1)$$

$$\alpha = 2W(0)Q_{dyn}(t)T_0 = 4\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{Q_{dyn}(t)T_0}{\Omega}, \quad (2)$$

where  $\mu$  is the linear absorption coefficient,  $\Omega$  the mosaicity.  $Q_{dyn}(t)$  represents the diffraction of the crystallites defined by the dynamical theory Authier (2001) as a function of the crystallite thickness.

The partial derivative of the equation 1 with respect to the crystal thickness calculates the crystal thickness maximizing the peak reflectivity (Table 1).

$$\frac{dR^{max}}{dT_0} = 0 \iff T_0 = \frac{\ln\left(\frac{2W(0)Q_{dyn}(t)}{\mu} + 1\right)}{2W(0)Q_{dyn}(t)}. \quad (3)$$

## 2.2 SiGe crystal curvature and thickness

CDP crystals are a very attractive alternative to mosaic crystals for two main reasons : Firstly, in CDP crystals the diffraction efficiency (i.e. the ratio of the diffracted over the transmitted beam intensity) can reach 100% while it is limited to 50% in the case of mosaic crystals. Secondly, the diffraction profile is rectangular for a CDP crystal while for a mosaic crystal it is close to a Gaussian. The footprint of a CDP crystal onto the focal plane is therefore narrower, in other words, CDP crystals have the potential to produce the best signal to noise ratios. SiGe CDP crystals are composed in majority of perfect silicon crystal (around 99%) with a variable concentration of germanium to extend the lattice spacing along of the growth direction and bent the perpendicular diffracting planes (Fig. 1 right). These crystals are described by the Penning, Polder and Kato (PPK) theory (Malgrange, 2002). The ratio of diffracted intensity at the plateau over incident intensity is shown in equation 4.

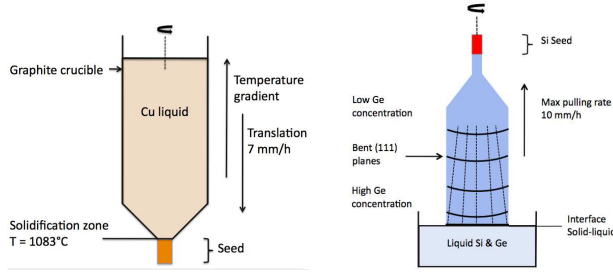
$$\frac{I_h}{I_0} = (1 - e^{-\frac{\pi^2}{\alpha}}) e^{-\frac{\mu T_0}{\cos \theta_B}} \quad (4)$$

$$\alpha = \frac{\Omega \Lambda_0^2}{T_0 d_{hkl}} \quad (5)$$

where  $\mu$  is the linear absorption coefficient,  $T_0$  the crystal thickness,  $\Lambda$  the extinction length,  $d_{hkl}$  the diffracting planes d-spacing and  $\Omega$  the FWHM of the angular distribution of curved planes.

The partial derivative of equation 4 shown in equation 7 permits to calculate the diffracting plans curvature  $c_c$  maximizing the peak reflectivity. With the equation 6 we can then calculate the associated crystal thickness in order to obtain a given angular dispersion  $\Omega$ .

$$c_c = \frac{1}{R_c} = \frac{\Omega}{T_0} \quad (6)$$



**Fig. 1** Sketch of the Bridgman (left) and Czochralski (right) growth processes, used to produce mosaic copper crystals and gradient silicon-germanium crystals.

$$\frac{dI_h}{dc} = 0 \iff c_c^{opt} = \frac{\pi^2 d_{hkl}}{\ln \left( 1 + \frac{\pi^2 d_{hkl} \cos \theta_B}{\Lambda_0^2 \mu \Omega} \right) \Lambda_0^2} \quad (7)$$

At 300 keV, the optimal radius of curvature and thickness are 159 m and 23 mm respectively. Whereas the optimal couple is 250 m and 36 mm at 511 keV.

### 3 Crystal growth

#### 3.1 Copper mosaic crystals

Our Copper mosaic crystals are produced by the monochromator group of the neutron laboratory at ILL (Grenoble, France). They used the Bridgman growth technique to grow 8 kg ingots as shown in figure 1 (left). A high purity (99.99%) copper ingot is melted in a gradient temperature furnace. It is gently moved down (7 mm/h) in the cold area to solidify and gradually grow on a copper seed which orientates the crystalline planes. The copper crystal growth involves to heat the furnace to 1083 °C with a temperature gradient of 3 °C/cm to partially melt the seed. Three independent heating zones in the furnace are tuned to maintain these condition during the 40 h of the growth process. Using the Bridgman technique the monochromator group has the capability to produce one 8 kg cylindrical ingot in a week, counting the heating and cooling durations.

From a unique ingot, between 125 and 270 pieces can be cut (according to the crystal thicknesses) by Electric discharge machining (EDM). During this process, the ingot has to be orientated precisely in order to be cut within 1 arcmin of the direction of the diffracting planes. Crystal cutting induces damages due to spark erosion on its surface, this is why the optimized cutting speed is only 0.1 mm/min. The damage depth, depending to the cutting speed, can be reduced by a chemical etching with nitric acid, removing a part of the perturbed layers. Thereby, the main challenge for the monochromator group is to maintain the natural mosaicity to the required value, around 30 arcsec, and avoid the polycrystalline growth producing more than one diffracted beam.

The 15 crystals measured for this study were selected from the best parts of two different ingots, using the ILL diffractometer. This instrument is capable to distinguish the dislocations and polycrystalline parts of the ingot but is not sufficient to achieve a high resolution measurement of the crystalline properties.

### 3.2 Silicon-germanium CDP crystals

SiGe solid solution is the main possible material candidate for the growth of CDP crystals. Because of the Si and Ge miscibility, the change of crystal composition leads to change the lattice parameter and the crystal d-spacing to produce the curvature of the crystalline planes. Si and Ge are chemically stable and the crystal growth technology of both semiconductors is already developed. The SiGe bent crystals were developed and produced at IKZ in Berlin using the Czochralski method (Fig. 1 (right)) (Abrosimov, 1996). The totality of the silicon and germanium are melted in a crucible, in the surface of which a silicon seed is slowly pulled back. The silicon crystallizes preferentially in the solid-liquid interface on the seed, increasing the germanium concentration in the crucible during the growth process and producing a concentration gradient along of the growth axis. The increasing germanium concentration deforms the crystal planes as illustrated in figure 1, and produces a spherical curvature of the planes, perpendicular to the growth axis.

If the Ge concentration remains low in the crystal the curvature radius  $R_c$  is approximately proportional to the gradient of germanium concentration  $\nabla C_{Ge}$  (Smither et al., 2005);

$$\nabla C_{Ge} \approx 25/R_c \quad (8)$$

In our case, a homogeneous curvature is needed in the whole usable volume of ingot, thereby, the gradient of germanium concentration must be constant during the growth process. Linking the equations 7 and 8 the concentration gradients for 300 and 511 keV become 0.16 and 0.10 %/cm, respectively. The desired value can be reached all along the ingot reducing its diameter during the growth (between 30 and 60 mm). Five ingots of Si-Ge were produced at IKZ for this study and 26 crystals (Table 3) were cut with an annular saw. The cut process allows the diffracting planes to be aligned with the external surfaces within 5 arcmin. The time needed to produce one SiGe ingot is estimated to 50 hours, including the time to cut 5 pieces inside.

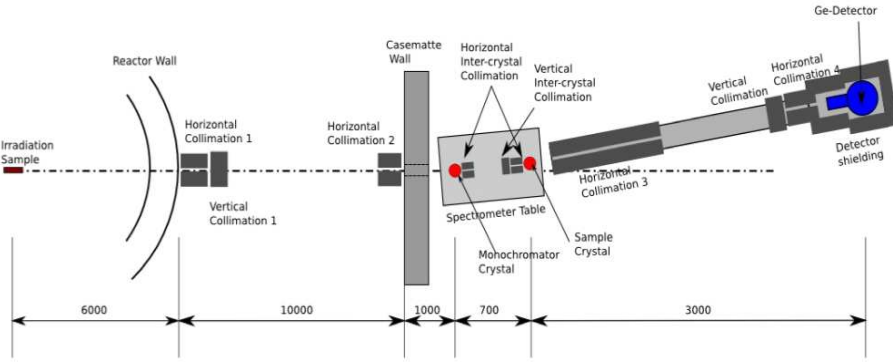
## 4 Experimental set-up

### 4.1 ILL GAMS-5 spectrometer

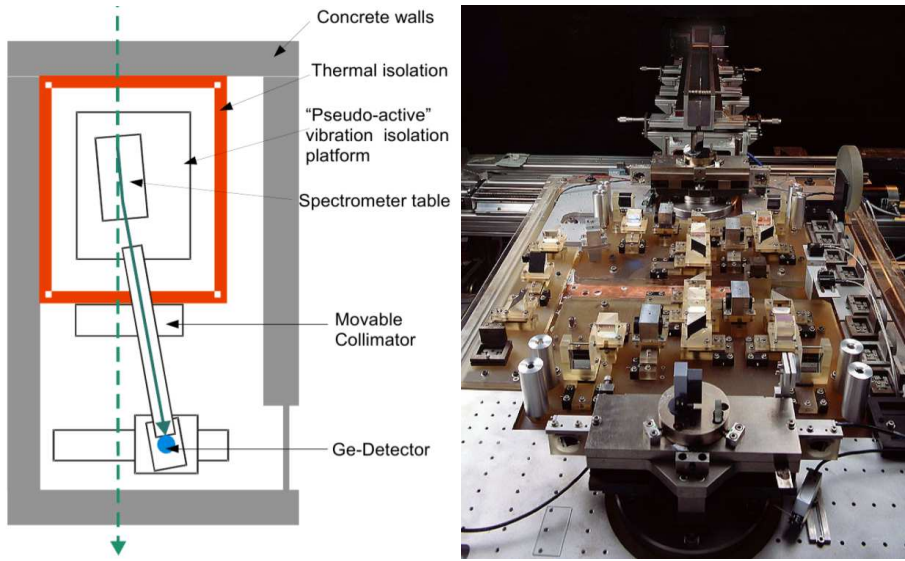
All measurements have been performed using the double crystal spectrometer GAMS5, based on the concept of GAMS4 described by Kessler (2001) [E. Kessler et al., Nucl. Instr. And Meth. (2001) vol 457 p 187-202]. The spectrometer is installed in the experimental Hall of the ILL High-Flux neutron reactor at the exit of the H6/H7 beam tube. Targets can be placed inside the beam tube and irradiated by a thermal neutron flux to produce nuclear gamma ray lines by neutron capture. This gamma rays are collimated between the targets and the monochromator to shape a beam with low divergence. Then a monochromator, at a distance of 17 meters from the targets, selects the desired nuclear line and send it on the studied sample placed on a goniometer (see figure 2).

A part of the monochromatic ( $\Delta E/E \sim 10^{-6}$ ) and parallel beam ( $\sim 1 \text{ arcsec}$ ) is diffracted by the sample in Laue geometry and collected by a high purity germanium detector. The monochromator and sample crystals are both placed on the spectrometer table, in a noise and vibration isolated casemate. The table held on air-pads follows the diffraction geometry using a precise translation stage (Fig. 3).





**Fig. 2** Scheme of the whole GAMS 5 beam-line from the gamma ray source (left) to the germanium detector (right) (source Michael Jentshel).

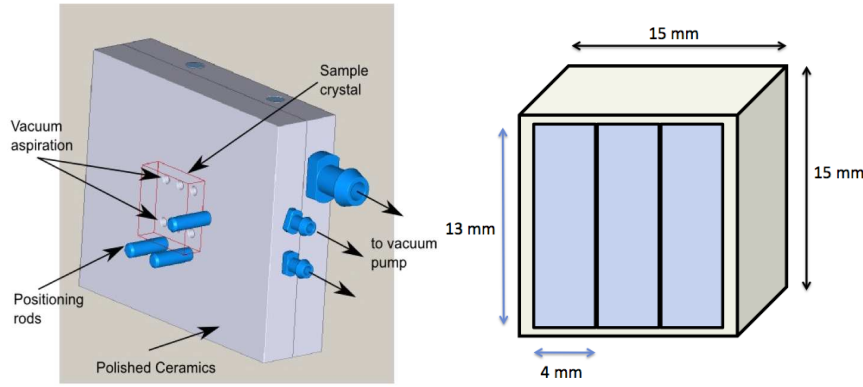


**Fig. 3** Left: Scheme of the spectrometer table in the casemate. Right: Picture of spectrometer table with the Michelson interferometer and the both monochromator (bottom) and sample (top) crystals (source Michael Jentshel).

The both crystals are rotated using a rotation stage helped with a piezo and monitored by two Michelson interferometer with an angular resolution in the order of 0.0002 arcsec over the range of 20 degrees.

#### 4.2 Instrumental configuration

Prior measurements on diffracting crystals pointed up the necessity to qualify the sample at the energy for which it was made to diffract. Thus the selected nuclear lines, close to 300, 511 and 847 keV, were 284, 511 and 815 keV lines of  $Er_2O_3$  and 517 keV line from  $BaCl_2$ . The 10 mm thick silicone 220, used as monochromator for all the



**Fig. 4** Left: Scheme of the sample holder used to measure the copper and SiGe crystals on GAMS 5. It is made of a ceramic plate, vacuum pipes and three rods. Right: Schematic view of the beam collimation on the samples. Each crystal is measured in three different areas to cover the whole sample surface.

crystal measurements, was bent to enlarge the acceptance width to 1.4 arsec, increasing the incident flux on our sample. However the acceptance width of the monochromator stay sufficiently low to avoid the convolution of its divergency with the measured sample and also avoid a long deconvolution treatment.

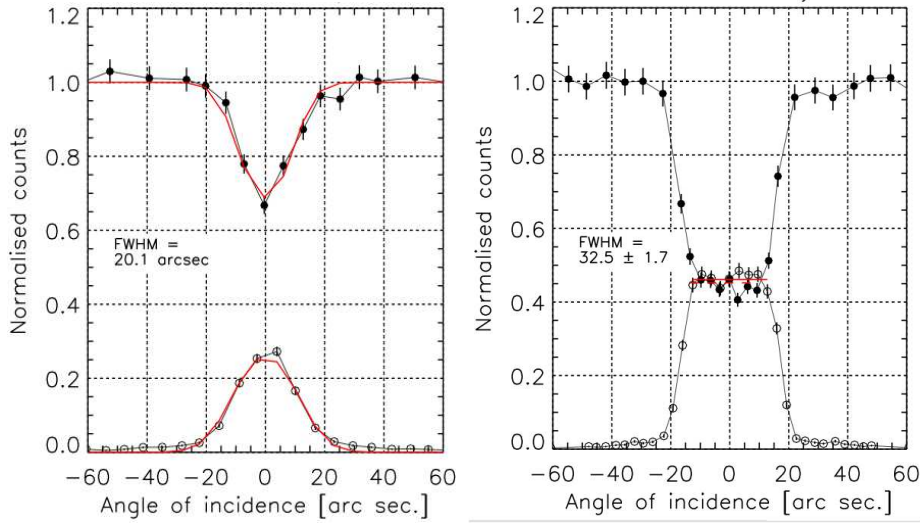
A vacuum pumping holder (Fig. 4 left) was used in order to suck the crystals on a polished ceramic plate and provide a fast and reproducible sample mounting. Six holes are pierced in the plate and connected to the vacuum pipes, whereas three rods allow a stable crystal mounting without damage.

The size of the collimated beam was not large enough to cover in one measurement the whole crystal surface (15x15 mm). The samples were measured in three spots, with a vertical and horizontal collimation of 13 and 4 mm respectively (Fig. 4 right), allowing the estimation of the crystal homogeneity.

#### 4.3 Measurement principle

The diffracted and transmitted beam intensity were recorded for each crystal spot, accordingly to the crystal orientation around the Bragg angle. These measurements, called rocking curves (RC), were acquired placing the germanium detector successively in the diffracted and transmitted beam. The RCs are characteristic to the crystallin properties of the sample, giving access to the mosaicity and the diffraction efficiency. The mosaicity of copper crystals, close to the FWHM of the rocking curve, is calculated fitting the Darwin's model (equation 1) on the RC (Fig. 5). Whereas the angular spread of the bent SiGe crystals is directly the FWHM of the square shaped RC.

The diffraction efficiency is calculated by the ratio of the diffraction peak intensity over the intensity level of the transmitted beam without diffraction (figure 5). Then the diffraction efficiency can be converted to reflectivity taking into account the beam absorption crossing the crystal thickness, to get back the incident flux on the sample.



**Fig. 5** Left: Examples of rocking curves (RC) recorded in transmission (top) and diffraction positions (bottom) for the copper crystal 835.27. The curve represents the fitted model used to extract the mosaicity (close to the FWHM), and the diffraction efficiency (peak intensity). Right: Examples of rocking curves (RC) recorded in transmission (top) and diffraction positions (bottom) for the SiGe crystal 398.3. The bars represent the estimation of the RC top used to calculate the diffraction efficiency.

## 5 Measurement results

### 5.1 Copper mosaic crystals

The two ingots produced by the monochromator group were quickly measured with the ILL diffractometer to find the best parts from where 15 samples were cut. The percentage of usable copper in the ingots was estimated to 50% due to inhomogeneities along the ingot. The table 2 presents the crystal names, orientations, thicknesses and nuclear lines used to measure it.

The measurement results are summarized figure 6 and compared with the theoretical peak reflectivity (curves) and the required mosaicity (straight lines). The error bars represent the crystal homogeneity with the standard deviation ( $1\sigma$ ) of reflectivity and mosaicity for the three measured spots on each crystal.

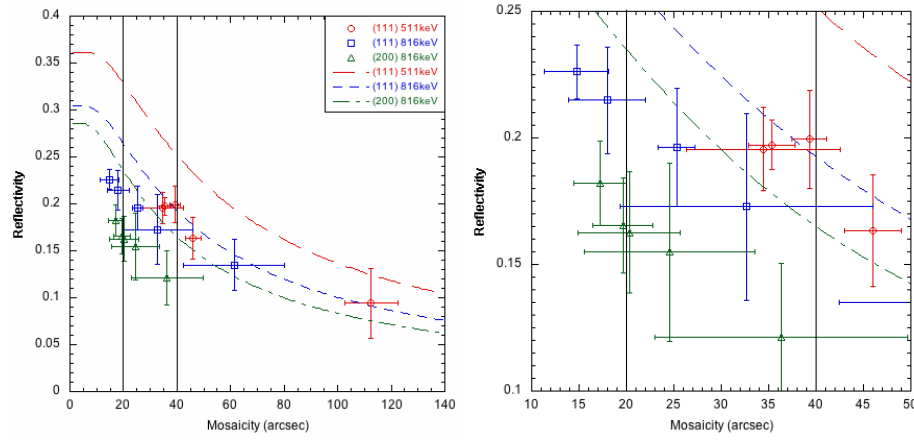
Around 50% of the copper samples have a mean mosaicity comprised between 20 and 40 arcsec, as required. But only 2 of the 15 copper crystals have 90 % ( $1.6\sigma$ ) of their surface in the same range. The measured reflectivity, clustered between 10 and 20 %, don't reach the theoretical maximum. However each crystal group follows the theory with an offset around 5 % lower. This difference could be explained by the crystallite sizes, larger in the copper crystals than expected (between 40 and 60 microns).

### 5.2 Silicon-germanium gradient crystals

Similarly to the copper crystals, the measurement results of the SiGe samples are shown figure 7 and also compared with the theoretical maximum of reflectivity (dashed

**Table 2** List of the produced and measured copper crystals. Are referred the diffracting planes, crystal thicknesses and nuclear lines used to measure them.

| Crystal name | Material | Orientation (hkl) | Thickness (mm) | Energy (keV) |
|--------------|----------|-------------------|----------------|--------------|
| 835.21       | Cu       | 200               | 9.7            | 815.99       |
| 835.23       | Cu       | 200               | 9.7            | 815.99       |
| 835.25       | Cu       | 200               | 9.7            | 815.99       |
| 835.26       | Cu       | 200               | 9.7            | 815.99       |
| 835.27       | Cu       | 200               | 9.7            | 815.99       |
| 834.9.1      | Cu       | 111               | 8.6            | 815.99       |
| 834.9.2      | Cu       | 111               | 8.6            | 815.99       |
| 834.9.3      | Cu       | 111               | 8.6            | 815.99       |
| 834.10.1     | Cu       | 111               | 8.6            | 815.99       |
| 834.10.2     | Cu       | 111               | 8.6            | 815.99       |
| 834.6.1      | Cu       | 111               | 4.5            | 511          |
| 834.6.2      | Cu       | 111               | 4.5            | 511          |
| 834.6.3      | Cu       | 111               | 4.5            | 511          |
| 834.6.4      | Cu       | 111               | 4.5            | 511          |
| 834.6.5      | Cu       | 111               | 4.5            | 511          |



**Fig. 6** Top: Peak reflectivities measured on the copper crystals, as a function of the mosaicity. The error bars represent the standard deviation of the reflectivity and mosaicity on the three measured spots. The recorded reflectivity is compared to the theoretical maximum (in dashed curves) for a crystallite size of 60 microns. Bottom An enlargement around the required range (20-40 arcsec) of the same graphic.

curves). The mean mosaicity and standard deviation (error bars at  $1\sigma$ ) of 70% of the measured crystals are situated in the required range (20-40 arcsec), and at least 50% of them have 90% ( $1.6\sigma$ ) of the surface in the same range of mosaicity. The small variation of mosaicity among the samples is due to the germanium gradient concentration, which is not exactly constant along the ingot.

The two crystal groups optimized for 300 and 511 keV are clearly visible in figure 7 with a reflectivity in the range 20-30% and 10-20% respectively. The measured reflectivities follow the theoretical maximum with an offset around 15 and 10% respectively.

**Table 3** List of the produced and measured SiGe crystals. Are referred the diffracting planes, crystal thicknesses and nuclear lines used to measure them.

| Crystal name | Material | Orientation (hkl) | Thickness (mm) | Energy (keV) |
|--------------|----------|-------------------|----------------|--------------|
| 403 1a       | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 403 1b       | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 403 2        | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 403 3        | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 403 4        | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 394 1b       | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 394 1a       | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 394 2        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 394 3        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 394 4        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 398 1a       | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 398 1b       | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 398 2        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 398 3        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 398 4        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 371 1a       | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 371 1b       | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 371 2        | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 371 3        | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 371 4        | SiGe     | 111               | 36             | 517.07       |
| 372 5        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 372 4        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 372 3        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 372 2        | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 372 1b       | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |
| 372 1a       | SiGe     | 111               | 23             | 284.56       |

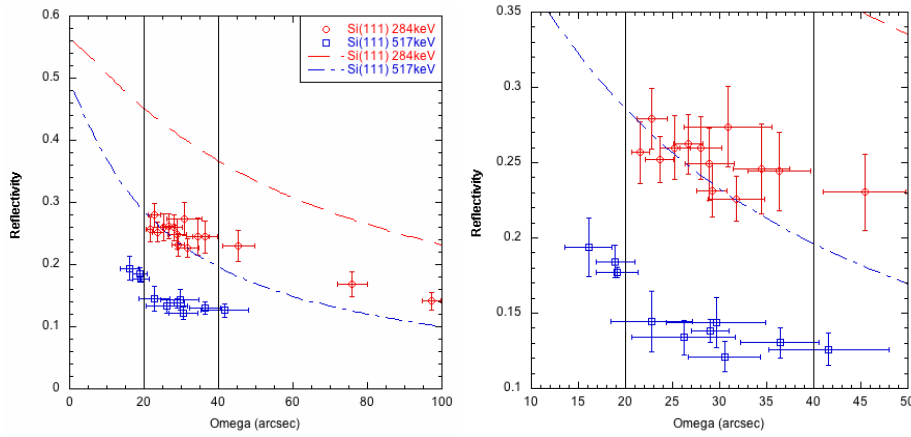
## CONCLUSION

The measurements held in GAMS-5 indicated that the difficulty to grow copper crystals with a very low mosaicity was lifted up with some samples measured for the first time under 20 arcsec.

But as shown figure 6 the growth process is not completely reproducible and produces too large crystallites to reach the required reflectivity. Future developments will have to adjust the crystal mosaicity in the required range and allow a better homogeneity in the both crystals and ingots.

The SiGe gradient crystals were produced with a good homogeneity of the planes curvature, clustered around the needed mosaicity and a low gradient drift in the ingot along the growth axis (Fig. 7). The two crystal groups, optimized to diffract 300 and 511 keV, present a reflectivity gathered around 15% and 25% respectively. This performance, which stay far from the theoretical maximum, could be explained by the influence of the low germanium concentration perturbing the silicone crystal, no more perfect.

**Acknowledgements** The authors acknowledge continuing support from the French Space Agency CNES, which funded the study presented all along this paper.



**Fig. 7** Top: Peak reflectivities measured on the SiGe gradient crystals, as a function of the mosaicity. The error bars represent the standard deviation of the reflectivity and mosaicity on the three measured spots. The recorded reflectivity is compared to the theoretical maximum (in dashed curves) for a crystallite size of 60 microns. Bottom An enlargement around the required range (20-40 arcsec) of the same graphic.

## References

- Abrsominov NV (1996) Single crystal growth of sige by the czochralski technique. *Journal of Crystal Growth* 166:657–662
- Authier A (2001) *Dynamical Theory of X-ray Diffraction*. Oxford University Press
- Darwin CG (1922) *Phil Mag* 43:800
- Halloin H, Bastie P (2005) Laue diffraction lenses for astrophysics: Theoretical concepts. *Experimental Astronomy* 20:151–170
- Halloin H, et al (2003) Performance of claire, the fist balloon-borne gamma-ray lens telescope. *NIM A* 504:120–125
- Malgrange C (2002) X-ray propagation in distorted crystals : From dynamical to kinematical theory. *Crystal Research and Technology* 37:654–662
- Roques JP, Schanne S, von Kienlin A, Knodlseder J, Briet R, Bouchet L, Paul P, Boggs S, Caraveo P, Casse M, Cordier B, Diehl R, Durouchoux P, Jean P (2003) Spi/integral in-flight performance. *Astronomy & Astrophysics* 411:91
- Ubertini P, Lebrun F, Di Cocco G, Bazzano A, Bird AJ, Broenstad K, Goldwurm A, La Rosa G, Labanti C, Laurent P, Mirabel IF, Quadrini EM, Ramsey B, Reglero V, Sabau L, Sacco B, Staubert R, Vigroux L, Weisskopf MC, Zdziarski AA (2003) IBIS: The Imager on-board INTEGRAL. *Astronomy & Astrophysics* 411:L131–L139, DOI 10.1051/0004-6361:20031224
- Zachariasen WH (1945) *Theory of X-ray diffraction in crystals*. Dover Publication

### 4.5 Cristaux de cuivre et SiGe pour le module prototype

En Mars et Mai 2008, plusieurs échantillons de cuivre et SiGe ont été caractérisés à l'aide de ID-15-A à l'ESRF afin de sélectionner les dix meilleurs cristaux qui seront fixés sur le prototype de segment de lentille (décrit dans le chapitre 5).

Ces cristaux possèdent les mêmes origines que ceux de l'étude ESA décrite en 4.4. Les échantillons de cuivre et SiGe ont été produits et découpés respectivement par le groupe monochromateur de l'ILL et par l'IKZ.

**Configuration instrumentale** L'instrument ID-15-A de l'ESRF a été utilisé pour réaliser ces mesures, à l'aide de deux monochromateurs de Ge 711 de 5 mm d'épaisseur. Nous avons utilisé un faisceau de 0.5 mm de large et 1 mm de haut et trois énergies différentes (303, 494 et 589 keV) d'une largeur spectrale d'environ  $\Delta E/E \approx 3\%$ .

**Cristaux de cuivre mosaïques** Les Figure 4.11 et 4.12 présentent respectivement les mosaïcités et les réflectivités des cristaux de cuivre. Ces cristaux possèdent trois différentes épaisseurs, 3, 5 et 9 mm. Certains sont découpés avec des sections de 15x15 mm, tandis que d'autres (losanges sur les graphiques 4.11 et 4.12) sont encore sous la forme de barreaux.

Parmi tous les cristaux de cuivre étudiés, certains (encadrés dans la partie supérieure des graphiques 4.11 et 4.12) ont été trop fortement serrés lors de la découpe. Il en résulte une altération de l'homogénéité des cristaux, une augmentation de leur mosaïcité et une dégradation de leur réflectivité. Ce défaut a toutefois pu être corrigé lors de la fabrication des échantillons suivants, mais rappelle l'importance de l'étape de la découpe pour l'obtention de cristaux faiblement mosaïques.

Les six cristaux encadrés (dans la partie inférieure des graphiques 4.11 et 4.12) ont été sélectionnés pour être montés sur le prototype de segment de lentille réalisé en collaboration avec le CNES et Thales Alenia Space. Les épaisseurs extrêmes ont été choisies avec trois cristaux de 3 mm et trois de 9 mm afin d'étudier son influence sur la faisabilité du prototype.

Les cristaux sélectionnés possèdent ainsi une mosaïcité comprise entre 10 et 30 arcsec et une réflectivité supérieure à 30%.

**Cristaux de SiGe courbes** Trois boules de SiGe ont été fabriquées à l'IKZ, avec pour ambition de produire une largeur à mi-hauteur des RCs constante ( $\Omega \sim 30\text{arcsec}$ ), grâce à un gradient de concentration de germanium également constant le long de l'axe de croissance.

Les Figures 4.13, 4.14 et 4.15 présentent les résultats de mesures de  $\Omega$  en fonction de la position dans la boule (à gauche) et de l'efficacité de diffraction en fonction de  $\Omega$  (à droite).

Le premier cristal de la boule 359 (Figure 4.13) a été sélectionné pour être monté sur le prototype grâce à la courbure homogène des plans 111 et une largeur à mi-hauteur des RCs comprises entre 20 et 30 arcsec. Les cristaux suivants présentent de

## 4.5. CRISTAUX DE CUIVRE ET SIGE POUR LE MODULE PROTOTYPE

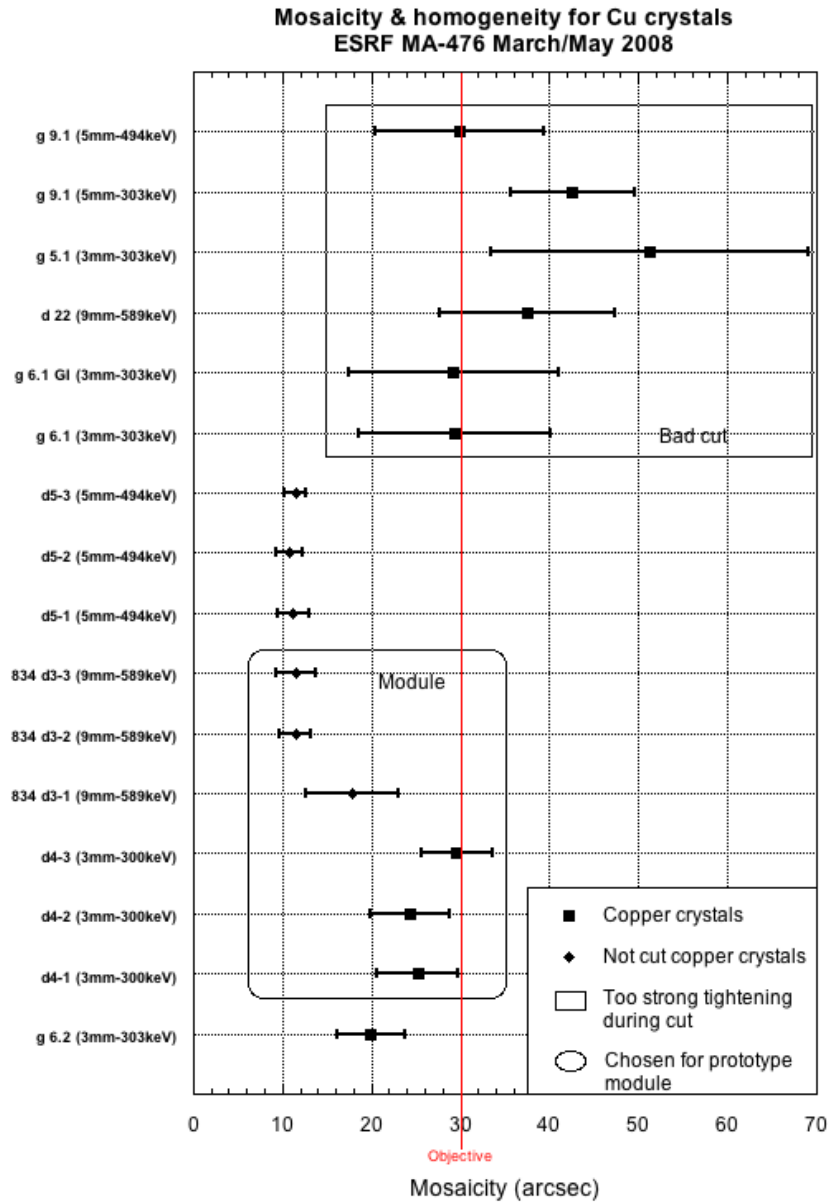


FIGURE 4.11 – Graphique présentant la mosaïcité des cristaux de cuivre. Sont indiqués le nom des cristaux (arbitraire), leur épaisseur ainsi que l'énergie utilisée pour leur mesure, proche de celle pour laquelle leur épaisseur est optimisée. Les barres d'erreur indiquent l'écart type des cinq mesures effectuées sur chaque cristal et représentent ainsi leur homogénéité.



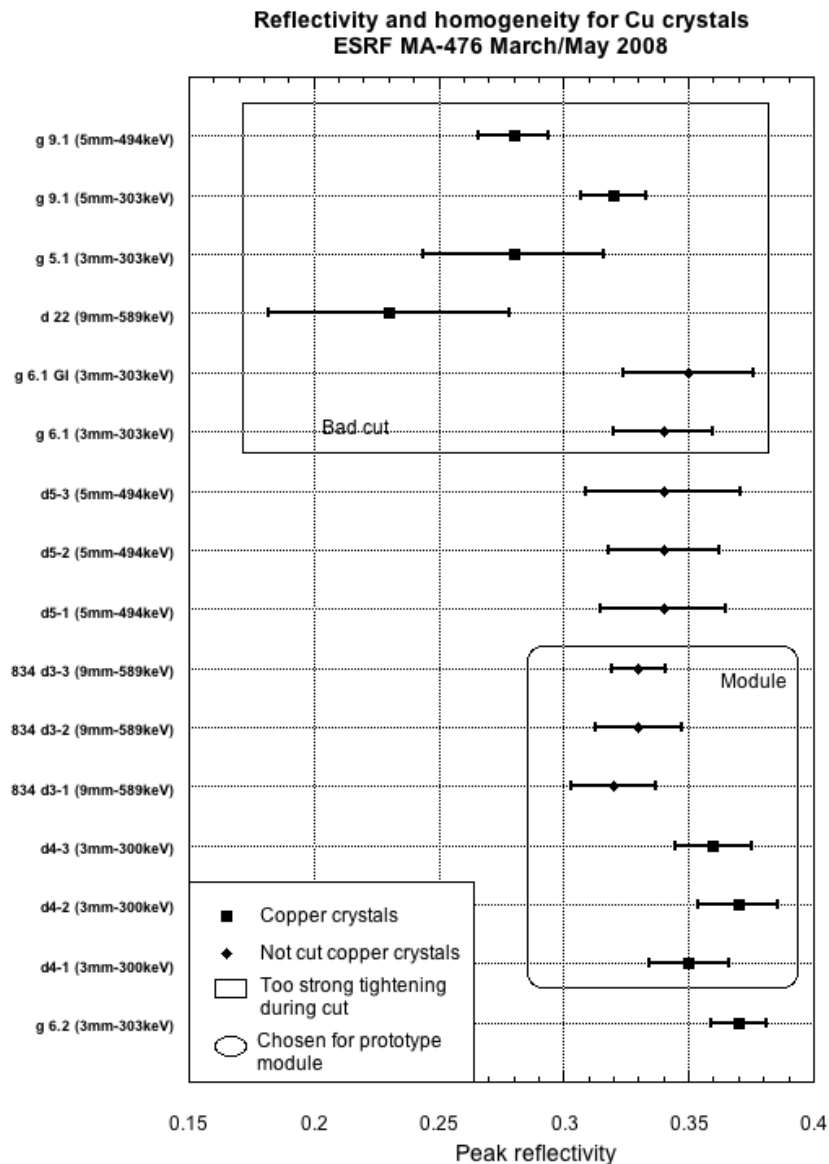


FIGURE 4.12 – Graphique présentant la réflectivité des cristaux de cuivre. Sont indiqués le nom des cristaux (arbitraire), leur épaisseur ainsi que l'énergie utilisée pour leur mesure, proche de celle pour laquelle leur épaisseur est optimisée. Les barres d'erreur indiquent l'écart type des cinq mesures effectuées sur chaque cristal et représentent ainsi leur homogénéité.

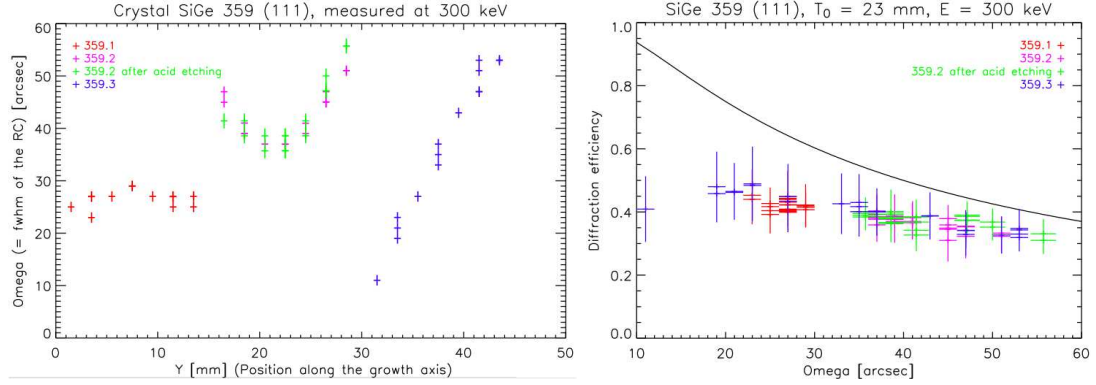


FIGURE 4.13 – A gauche :  $\Omega$  (largeur à mi-hauteur des RCs) en fonction de la distance le long de l'axe de croissance de la boule de SiGe numéro 359. A droite : Efficacité de diffraction en fonction de  $\Omega$ . Les mesures ont été effectuées sur ID15A à l'aide d'un faisceau de 300 keV. Trois cristaux de 15x15 mm de section et 23 mm d'épaisseur ont été découpés dans la boule, le deuxième ayant subi une attaque chimique (à base d'acide fluorhydrique).

forte variations de courbure le long de l'axe de croissance ainsi que des discontinuités au niveau des découpes. Le second cristal a également subi une attaque chimique à base d'acide fluorhydrique afin de retirer les couche cristallines superficielles, potentiellement altérées par la découpe. Toutefois aucune évolution des propriétés de diffraction n'ont pu être mesurées après traitement.

Les trois premiers cristaux de la boule 368 (Figures 4.15) ont également été sélectionnés pour être montés sur le prototype grâce à une faible et constante valeur de  $\Omega$  ( $\Omega \leq 40 \text{ arcsec}$ ). Les autres cristaux de la boule présentent une augmentation continue de la dispersion angulaire, liée à une augmentation du gradient de concentration de germanium le long de l'axe de croissance.

## 4.6 Cristaux d'or et d'argent

L'article intitulé "High-Z crystals for gamma-ray optics", publié au sein du proceeding SPIE de 2009 (Rousselle et al, 2009), est présenté ci-dessous. Il montre les résultats de mesures effectuées sur des échantillons d'or et d'argent provenant de la société Mateck (Allemagne). Ces mesures ont été successivement réalisées sur les instruments ID-15-A et GAMS-4 (Kessler Jr., 2001) entre Mars et Juin 2008.

Les résultats de mesures, présentés à la fin de ce papier, confirment les très bonnes performances théoriques des cristaux mosaïques d'or et d'argent étudiés au chapitre précédant, pour des énergies allant de 400 keV à plus de 700 keV. Ainsi les cristaux d'or et d'argent peuvent être fabriqués avec des propriétés cristallographiques compatibles avec une utilisation sur une lentille de Laue.

## CHAPITRE 4. CROISSANCE ET MESURE DE PERFORMANCE DES CRISTAUX

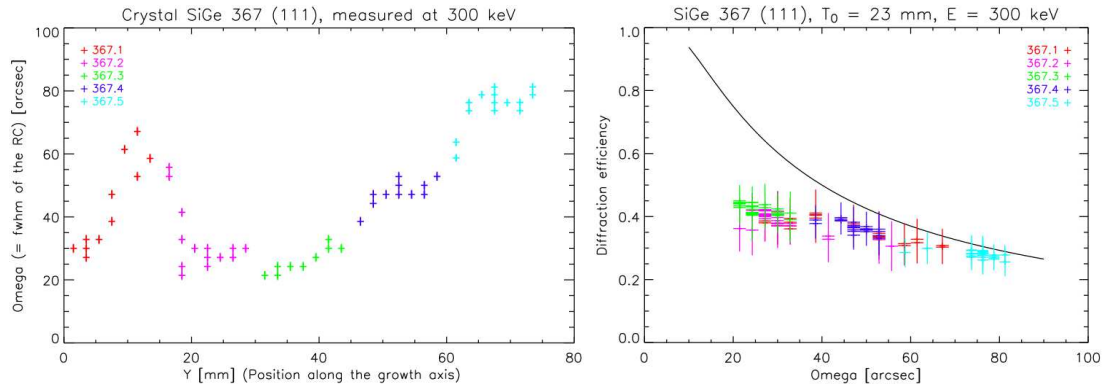


FIGURE 4.14 – A gauche :  $\Omega$  (largeur à mi-hauteur des RCs) en fonction de la distance le long de l'axe de croissance de la boule de SiGe numéro 367. A droite : Efficacité de diffraction en fonction de  $\Omega$ . Les mesures ont été effectuées sur ID15A à l'aide d'un faisceau de 300 keV. Cinq cristaux de 15x15 mm de section et 23 mm d'épaisseur ont été découpés dans la boule.

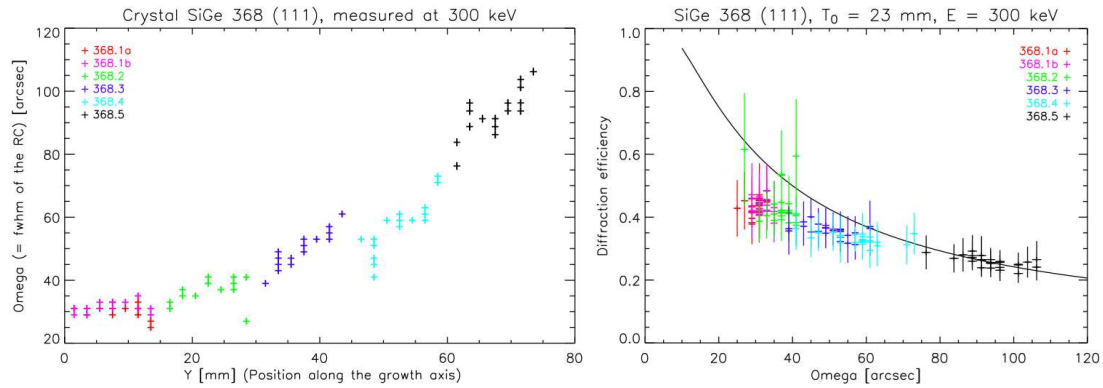


FIGURE 4.15 – A gauche :  $\Omega$  (largeur à mi-hauteur des RCs) en fonction de la distance le long de l'axe de croissance de la boule de SiGe numéro 368. A droite : Efficacité de diffraction en fonction de  $\Omega$ . Les mesures ont été effectuées sur ID15A à l'aide d'un faisceau de 300 keV. Six cristaux de 15x15 mm de section et 23 mm d'épaisseur ont été découpés dans la boule.

# High-Z crystals for gamma-ray optics

J. Rousselle<sup>ab</sup>, P. von Ballmoos<sup>ab</sup>, N. Barrière<sup>c</sup>, N. V. Abrosimov<sup>d</sup>, P. Bastie<sup>e</sup>, G. Bonnetto<sup>f</sup>,  
T. Camus<sup>ab</sup>, P. Courtois<sup>g</sup>, M. Jentschel<sup>g</sup>, E. Lecomte<sup>ab</sup>, E. Rivière<sup>h</sup>, G. Roudil<sup>ab</sup>

<sup>a</sup> Université de Toulouse; UPS; CESR; 9 ave colonel Roche, F-31028 Toulouse cedex 9, France;

<sup>b</sup> CNRS ; UMR5187 ; F-31028 Toulouse, France;

<sup>c</sup> INAF - IASF Roma, via Fosso del Cavaliere 100, 00133 Roma, Italy;

<sup>d</sup> IKZ, Max Born-Str. 2, D-12489 Berlin, Germany;

<sup>e</sup> LSP UMR 5588, 140 Av. de la physique, 38402 Saint Martin d'Hères, France;

<sup>f</sup> Thales Alenia Space, 100 Boulevard Midi, 06150 Cannes, France

<sup>g</sup> ILL, 6 rue Jules Horowitz, 38042 Grenoble, France;

<sup>h</sup> CNES, 18 avenue Edouard Belin, 31401 Toulouse, France;

## ABSTRACT

In a Laue lens a large number of crystals are disposed on concentric rings such as they diffract via Bragg-diffraction the incident gamma-rays onto a common focal spot. Compact structured high-Z mosaic-crystals are among the most efficient diffraction media for the domain of nuclear astrophysics (i.e.  $300 \text{ keV} \leq E \leq 1.5 \text{ MeV}$ ). We have studied the potential of various high-Z crystals such as Ir, W, Au, Ag, Pt, Rh and AsGa for a Laue lens application. The diffraction performance of gold, silver and platinum crystals have been measured during runs at the European Synchrotron Radiation Facility and in a reactor-beamline at the Institut Laue Langevin, Grenoble in France. Several of the tested high-Z materials show outstanding performances with reflectivities reaching the theoretical limits for mosaic-crystals, and hence open the way towards efficient focusing optics at MeV energies.

**Keywords:** Laue lens, gamma-rays, Bragg diffraction, mosaic crystals, nuclear astrophysics

## 1. INTRODUCTION

The soft gamma-ray domain is currently studied by ESA's INTEGRAL<sup>1</sup>. His main instruments, IBIS and SPI use coded masks, to observe the non-thermal and violent phenomena in the Universe. With the background rate induced on their large detectors by cosmic rays, the sensitivity of these instruments is intrinsically limited. A Laue lens is capable to push back these limitations thanks to a large collection area focusing onto a smaller detector. The instrument background and angular resolution authorize the detection of point sources up to MeV energy with the sensitivity required to study gamma ray lines with future space missions.

This paper begins with a brief explanation of the instrument operating principle and the diffraction theory needed to understand the theoretical study of diffracting materials such as gold and silver crystals. Next, recent measurement results are exposed to highlight the improved performances of the diffracting crystals, the instrument core. Using these results in a numerical model of the whole lens, a design using gold crystals is presented to illustrate the expected instrumental performance.

---

Further author information: E-mail: julien.rousselle@cesr.fr, Telephone: +33 561 55 77 80

## 2. LAUE LENS OPERATING PRINCIPLE

Almost all space-borne telescopes observing radiation up to 10 keV use focussing optics. Beyond this energy gamma rays are more and more difficult to deviate with grazing incidence mirrors. Above 100 keV, Bragg diffraction into crystal lattice is capable to focus gamma rays up to 1.5 MeV. The geometric relation between the diffracted wavelength  $\lambda$ , inter-plane distance  $d_{hkl}$  and incidence angle  $\theta$ , is given by the Bragg's law in equation (1),

$$2d_{hkl} \sin \theta_B = n\lambda, \quad (1)$$

where  $d_{hkl}$  determines the distance between planes defined by the Miller index (hkl),  $\lambda$  and  $\theta_B$  are respectively the wavelength and the ray angle incidence with atomic planes and  $n$  the diffraction order. The Bragg diffraction in a perfect crystal can thereby be seen as a reflection on atomic planes with an angle of incidence equal to the Bragg angle  $\theta_B$ .

The Bragg's law (equation 1) can be used by two diffraction geometries. In Bragg geometry, the incident beam is diffracted on atomic layers close to the crystal surface, limiting the absorption. While in Laue geometry the beam goes through the crystal causing an absorption linked to the crystal thickness. The Bragg angles for our applications are very small,  $0.33^\circ$  at 511 keV in copper (111), and implicate for the Bragg geometry a crystal length of 170 cm to diffract a beam with a section of 1 cm. Such crystal are very heavy and hard to build, this is why the Laue geometry, more compact, was selected for gamma lens.

The Laue lens needs a large collection area combining thousands of crystals, each one diffracting onto a common focal spot. The crystals are distributed on concentric rings depending to the energy diffracted as shown in Figure 1 and the following formula (2):

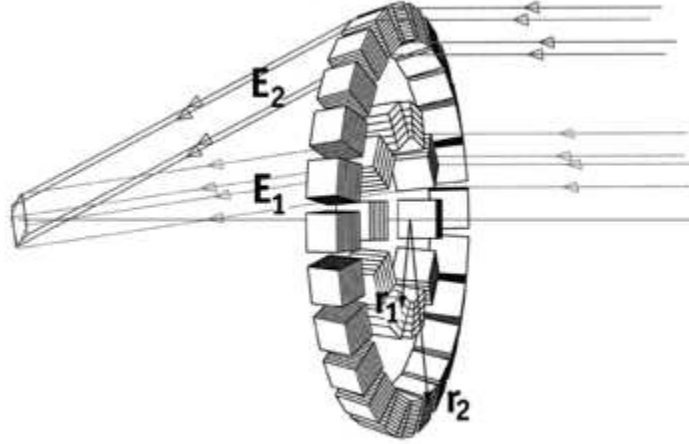


Figure 1. Scheme of the Laue lens principle with two crystal rings and an unique focal spot.

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \left( \frac{1}{2} \arctan \left( \frac{r}{f} \right) \right) \approx \frac{d_{hkl} r}{f}, \quad (2)$$

where  $r$  and  $f$  are the ring radius and the focal length.

## 3. THEORETICAL STUDY OF DIFFRACTING MATERIALS

Bragg's law in equation (1) shows that a perfect crystal diffracts only one energy for a given angle of incidence. At the first glance, this does not seem to be suitable to create an instrument with a broad energy bandpass, whereas mosaic crystals (Fig. 2) defined by Darwin's model can enlarge this bandwidth. They can be seen as

a mosaic of microscopic perfect crystals called crystallites, each one disoriented with a Gaussian distribution centered on the main diffracting direction. The FWHM of the crystallite angular distribution is called mosaicity  $\Omega$ , it determines the crystal energy bandpass. All the crystals modeled and measured in this paper are mosaic crystals.

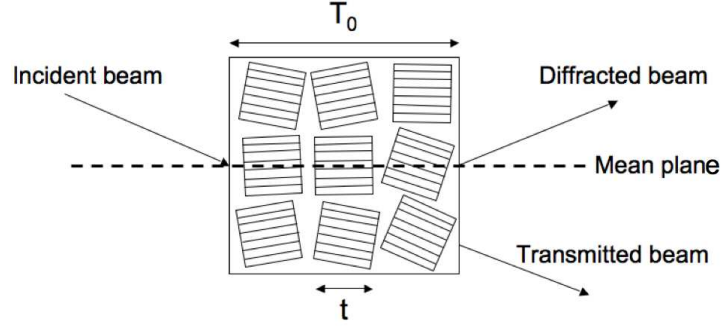


Figure 2. Darwin's model of a mosaic crystal with the crystallite orientations. With  $T_0$  and  $t$  respectively the whole crystal and the crystallite sizes.

We assume that the crystallites are perfect crystals without absorption, with a thickness  $t$  and an angular distribution  $W$ . The peak reflectivity, ratio of diffracted over incident intensities, with absorption applied to the whole crystal thickness  $T_0$  is defined by Zachariasen [1945]<sup>2</sup> :

$$R^{max} = \frac{1}{2} (1 - e^{-\alpha}) e^{-\mu T_0}, \quad (3)$$

$$\alpha = 2W(0)Q_{dyn}(t)T_0 = 4\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{Q_{dyn}(t)T_0}{\Omega}, \quad (4)$$

where  $\mu$  is the linear absorption coefficient.  $Q_{dyn}(t)$  represents the diffraction of the crystallites defined by the dynamical theory<sup>3</sup>. It is important to note that, contrary to perfect crystals, the reflectivity of mosaic crystals is theoretically limited to 50% even without taking into account the absorption. The crystallite reflectivity increases with the factor  $Q_{dyn}$ , which is function of the element atomic density, varying with the atomic number  $Z$  and the lattice compactness. That is why high- $Z$  crystals, with compact cubic-face-centered structures, are preferred for a Laue lens application<sup>4</sup>.

To cover a broad energy bandwidth, the mosaicity  $\Omega$  must be large enough to enable the overlap of each rings bandpass. But the beam divergence linked to the mosaicity increase the signal spread over the detector, and as shown in equations (3) and (4) the reflectivity decreases with the mosaicity. A compromise has been found with an angular spread around  $30 \pm 10$  arcsec for crystals with a square section of 15 mm. The derivative function of equation (3) gives the optimal crystal thickness in function of material absorption, mosaicity and crystallite size, for a given energy:

$$\frac{dR^{max}}{dT_0} = 0 \iff T_0 = \frac{\ln \left( \frac{2W(0)Q_{dyn}(t)}{\mu} + 1 \right)}{2W(0)Q_{dyn}(t)}. \quad (5)$$

A numerical simulation has been developed to modelise the lattice structures and calculate the reflectivity of different materials in function of the diffracted energy.

Theoretical reflectivity of a selection of high- $Z$  crystals are presented Figure 3 and 4: where silver, gold and platinum crystals are simulated. We chose to compare these materials with copper and bent silicon crystals, which are the most studied for a Laue lens application.

Figure 3 shows the peak reflectivity for each material in function of energy, calculated for the optimal thickness with respect to equation (5). Under 400 keV, the perfect bent silicon<sup>5</sup> dominates the others materials. It is not mosaic the diffracted beam is therefore not limited to 50%. But beyond 400 keV, the low silicon density involves a quick fall of reflectivity. Over 400 keV and up to 800 keV, silver crystals seem to be the most efficient of the simulated materials, reaching 32% at 400 keV. Above 800 keV, gold and platinum crystals with their high atomic densities show the best reflectivity.

Figure 4 resumes the data from Figure 3 balancing the reflectivity with the crystal weight. The mass is calculated with a crystal section of 10 mm, the optimal thickness, function of the energy and the material density. The main objective of this study is to optimize both reflectivity and weight, which is a critical parameter for a space-born observatory. Silver is still the most efficient amongst the studied materials up to 500 keV, where gold and platinum gain on it with their crystal thickness twice thinner. The very close lattice parameters of gold and platinum crystals, such as their electron configuration, atomic density, lattice constant and geometry, explain the similar performances of the both crystals.

Gold, platinum and silver crystals seem to be very good candidates for a Laue lens application with high reflectivity and compact crystals. But gold and platinum appears more suitable for applications where the weight is an important parameter. The challenge is now to measure these materials to validate the simulated performances, and check the technical feasibility of such crystal with the required crystalline properties.

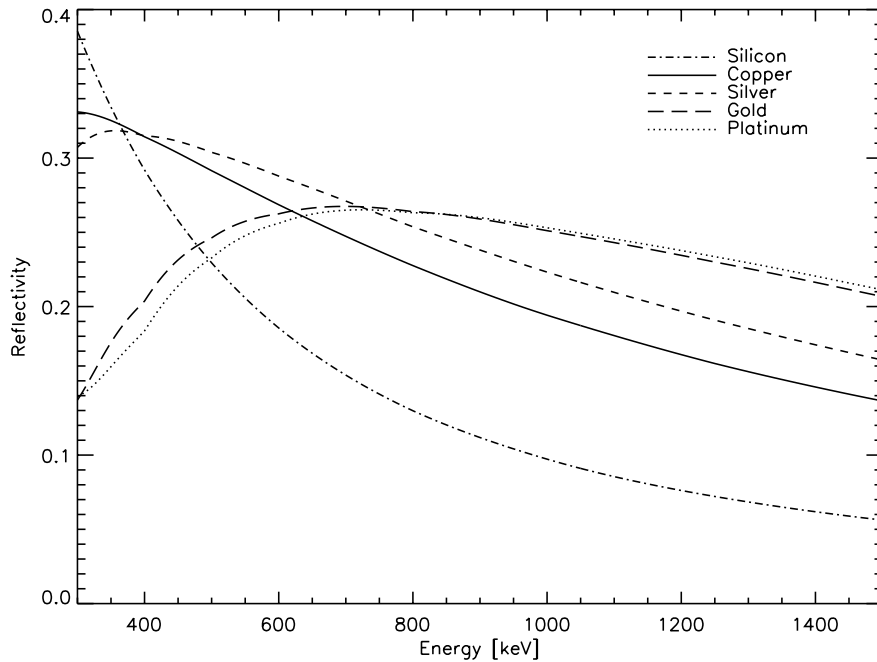


Figure 3. Peak reflectivity in function of energy for different materials using the (111) planes. The simulation uses a crystallite size of  $60 \mu\text{m}$ , a mosaicity of 30 arcsec and a optimal crystal thickness calculated for each energy. Every crystals are mosaic except for the Si, which uses bent perfect planes.

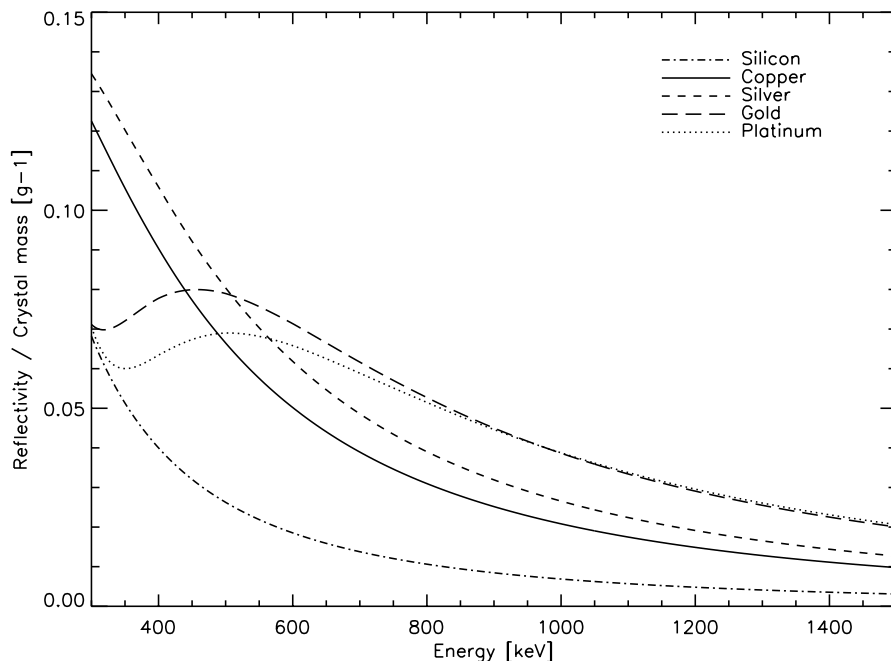


Figure 4. Peak reflectivity over crystal mass in function of energy, for different materials using the (111) planes. The mass is calculated with a crystal square section of 10 mm and the optimal thickness.

#### 4. MEASUREMENTS OF GOLD AND SILVER CRYSTALS

A total of four crystals have been bought from the german company Mateck GmbH<sup>6</sup>. They all have the same shape, a cylinder of 10 mm diameter and a thickness of 2 mm. A first gold crystal was measured at ESRF\* beamline ID15-A, with four different energies in March 2008. The second one and the silver crystal were measured in the ILL<sup>†</sup> reactor instrument GAMS 4, using three different diffracting planes in June 2008. The last bought crystal was in platinum but its very bad lattice quality didn't allow us to measure it correctly.

The objective of the measurement was to confirm the simulated performance, measure the mosaicity and study the fabrication quality and homogeneity. To comply with these objectives we measured, in both instruments, crystal rocking curves (RC), rotating the sample in a quasi-parallel and monochromatic beam. We plotted the diffracted intensity in function of the incidence angle on the sample, with the detector orientated in transmission or diffracted position as shown Figure 5 and 8. In both positions the RC gives the angular distribution of crystallites, which is linked to the mosaicity by its FWHM. With the transmission position we can measure the count rate of photons passing through the crystal and calculate the incident flux on the sample with the absorption coefficient. The reflectivity is calculated multiplying the diffraction efficiency which doesn't take into account the absorption, by the absorption coefficient.

##### 4.1 First gold measurement at ESRF instrument ID15-A

The first gold crystal was measured diffracting on (111) planes at 300, 400, 500 and up to 590 keV (the upper limit of our monochromator configuration providing sufficient statistics). The gold sample with its 2 mm thickness

\*European Synchrotron Radiation Facility, Grenoble, France

<sup>†</sup>Institut Laue Langevin, Grenoble, France



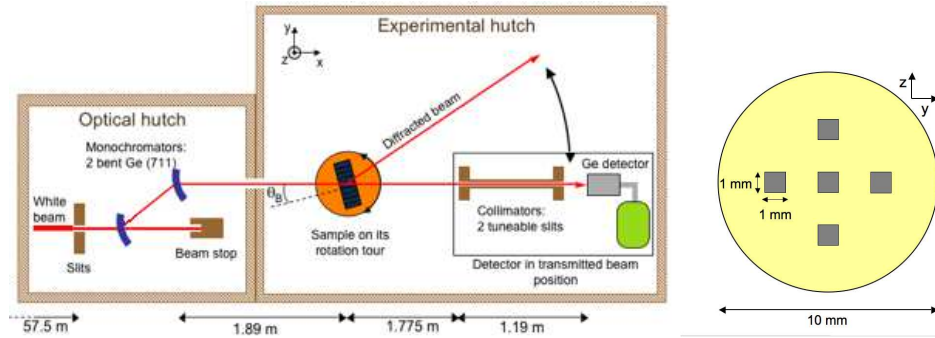


Figure 5. Left: Scheme of the experimental set-up of the ESRF instrument ID15A in March 2008. The Ge detector can be in transmission or diffraction position. Right: Representation of the five measured points on the first gold sample. The beam goes through the 2 mm of gold and diffracts on the (111) planes.

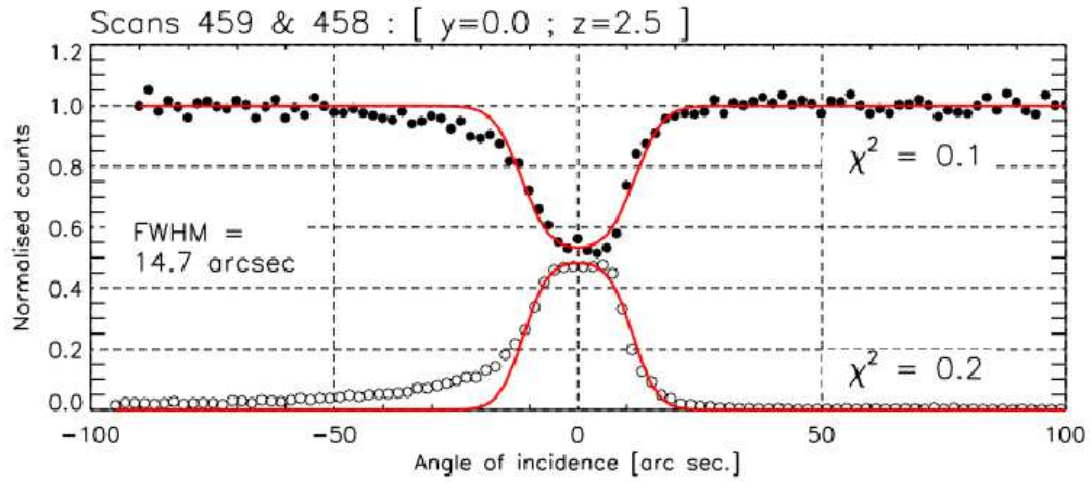


Figure 6. Rocking curve (RC) of the first gold crystal at 590 keV in the lower spot. The black and white circles represent respectively the measurements in transmission and diffraction geometries. The data are fitted with Darwin's model shown by the line. The value of the FWHM gives an idea of the mosaicity extracted from the model fit.

would have been suited for a beam energy of 630 keV. The maximum reflectivity is therefore not reached, but very close to the last measurement. The experimental set-up in the ID15-A instrument is described in Figure 5, where two monochromators (Ge 711) diffract an energy line with  $\Delta E/E = 0.2\%$ . The beam had a size of 1x1 mm on the sample, and five points were examined to study the crystal homogeneity (Fig. 5).

A RC is given in Figure 6 as example. The measured counts are plotted as a function of the incidence angle, in transmission and diffraction position. The fitted model gives in this case a mosaicity of  $15 \pm 1.5$  arcsec and a crystallite size of  $62 \pm 6$   $\mu\text{m}$ . The RC intensity gives the peak diffraction efficiency, here 47%, close to the theoretical limit of 50%. The peak reflectivity reaches 30% at 590 keV taking into account the absorption coefficient. The difference of performance with the simulated reflectivity represented in Figure 3 is due to the measured crystal mosaicity, which is twice thinner than the crystal requirements (Chap. 3).

Figure 7 shows synthesized results of the first gold crystal. Are presented the mean values of the five measured points and the standard deviation to see the crystal homogeneity. Up to 500 keV the mosaicity is in the required range, around 25 arcsec, but with irregularities in the crystal reaching 15% of the measured values. The diffraction efficiency is stable and homogeneous over energy, with nearly 50% it is close to the theoretical maximum for mosaic crystals. Due to the decreasing absorption, the reflectivity grows regularly to be close to 30% at 590 keV.

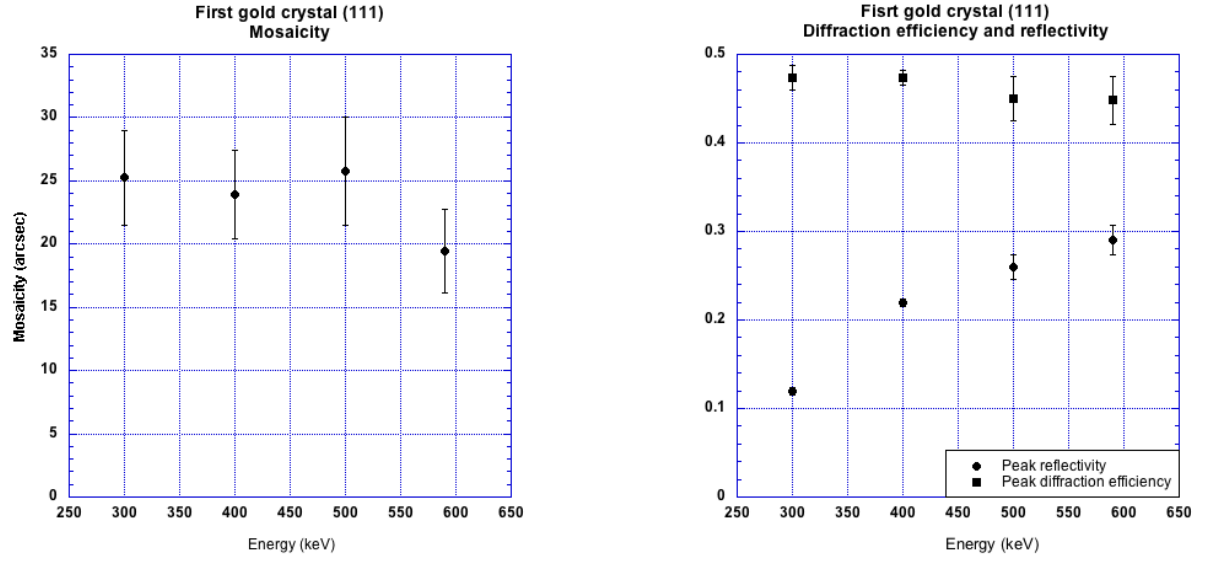


Figure 7. Left: mosaicity of the first gold crystal in function of energy. The error bars represent the standard deviation of the fives measured points. Right: Peak diffraction efficiency (squares) and reflectivity (circles) in function of energy.

## 4.2 Second gold and silver measurements at ILL reactor instrument GAMS 4

After the encouraging results of the first gold crystal measurements, a second gold crystal was acquired from Mateck GmbH<sup>6</sup> to study the reproducibility of the crystal growth. We also bought a silver sample theoretically less efficient than gold above 800 keV, but also less expensive by a factor 5. These crystals have been measured at the ILL<sup>‡</sup> reactor with the instrument GAMS 4. We chose the energy used for the measurement with the composition of the target (Fig. 8), which emits nuclear lines after neutron capture with neutrons coming from the reactor core. This nuclear lines allow us to use a more monochromatic beam than in ID15-A at ESRF ( $\Delta E/E \approx 10^{-6}$ ). However, the flux is lower and requires to use a larger beam than at ESRF. As a consequence we measured only one point (4x5 mm) on each crystal, as shown in Figure 8. The measurement principle remains the same with an instrumental set-up, presented in Figure 8. The gold and silver samples have a similar shape to the first gold crystal, a diameter of 10 mm and 2 mm thickness. We used a lines at 285 keV from a erbium target for gold and 184 keV for silver and a perfect silicon crystal (111) as monochromator to select the line and obtain a beam divergence lower than 1 arcsec. Each crystal was measured using the diffraction on the planes (111), (200) and (220).

We measured rocking curves in transmission and diffraction for each detector position and each crystal, as shown in Figure 9. The measurements fitted with Darwin's model, allow to estimate the mosaicity, the peak diffraction efficiency and the crystallite size (Table 1). Each result is the mean value of the both detector positions. The reflectivity is not presented because of the crystal thickness, which is not optimal for the energies used.

Table 1 summarizes the results obtained with the gold sample and shows very stable values of mosaicity, peak diffraction efficiency and crystallite size in function of diffracting planes. The mosaicity is higher than the first gold crystal shown in Figure 7 but stay close to the required range ( $30 \pm 10$  arcsec). To summarize the results, this second gold crystal is less efficient than the first one, with a diffraction efficiency around 37%, compared to the 45% of the first crystal.

<sup>‡</sup>Institut Laue Langevin, Grenoble, France

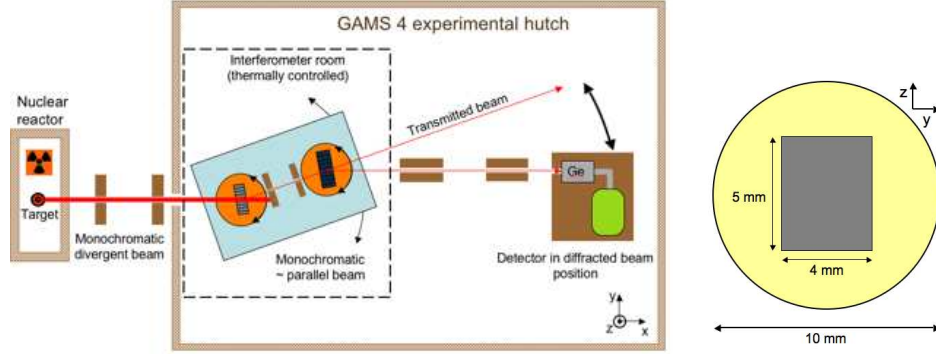


Figure 8. Left: Scheme of the experimental set-up of the ILL reactor instrument GAMS 4 in June 2008, where the Ge detector can be in translation or diffraction position. For these measurements the source was an erbium target and the first crystal (bottom left orange circle) was a silicon (111) monochromator. The erbium target emitted gamma-ray after neutronic capture with neutrons coming from the reactor core. Right: Representation of the measured area on the second gold and silver samples.

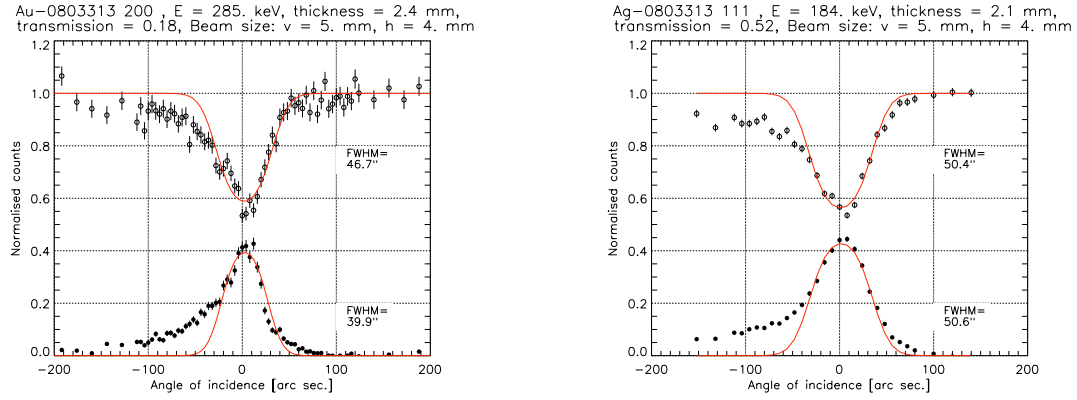


Figure 9. Rocking curves (RC) of the second gold crystal at 285 keV using (200) planes (left) and the silver crystal at 184 keV using (111) planes (right). The data are fitted with Darwin's model shown by the line. The FWHM values give an idea of the mosaicity extracted from the mode fit.

The silver crystal shows large variations of the fitted parameters as a function of diffracting planes, except for the crystallite size, which is still constant. The most efficient orientations are the (111) planes with a high diffraction efficiency. The mosaic spread is too large for the current requirements but can be explained by the low measurement energy (184 keV) and the primary extinction into the crystallites<sup>7</sup>. The previous measurements bring to light a drop of mosaicity with energy, and we could expect more suitable values above 300 keV with such crystals.

## 5. DESIGN AND SIMULATION OF A LAUE LENS

The observation of the major gamma-ray lines, such as the 847 keV line from  $^{56}\text{Co}$  decay and the 812 keV line of  $^{56}\text{Ni}$  from type Ia supernovae (SN Ia) are a direct means to measure the radioactive isotopes that power the observable light curves and spectra of these objects. They are major contributors to the production of heavy elements and hence a critical component for the understanding of life cycles of matter in the Universe and the chemical evolution of galaxies. This is why we chose 800-900 keV as energy band for our current DUAL mission concept<sup>8</sup>. The lens design has been dimensioned to reach  $1.2 \cdot 10^{-6} \text{ ph/s/cm}^2$  ( $3\sigma$  sensitivity) for a 3% broadened

Table 1. Results of measurements fitted with Darwin's model of mosaic crystals. Only one area has been measured on each crystal at 285 keV for gold and 184 keV for silver. The values are averaged between diffraction and transmission positions and the uncertainties come from the fitting errors. The crystal reflectivity is not shown because of the sample thickness, which is not optimal for the energies used.

| Elements  | Diffracting planes<br>(hkl) | mosaicity<br>(arcsec) | Diffraction efficiency<br>(%) | Crystallite sizes<br>( $\mu\text{m}$ ) |
|-----------|-----------------------------|-----------------------|-------------------------------|--|
| <b>Au</b> | (111)                       | $43 \pm 4$            | $36 \pm 2$                    | $54 \pm 3$                             |
|           | (200)                       | $43 \pm 3$            | $40 \pm 3$                    | $46 \pm 2$                             |
|           | (220)                       | $44 \pm 2$            | $34 \pm 3$                    | $49 \pm 2$                             |
| <b>Ag</b> | (111)                       | $50 \pm 2$            | $43 \pm 2$                    | $44 \pm 1$                             |
|           | (200)                       | $86 \pm 4$            | $34 \pm 2$                    | $44 \pm 2$                             |
|           | (220)                       | $75 \pm 5$            | $29 \pm 3$                    | $43 \pm 2$                             |

line at 847 keV. The lens is made up of 689 Au(111), 792 Au(200) and 1129 Cu(200) crystals, with ring radius between 40 and 60 cm and a focal length of 68 m. This geometry induces a effective area shown in Figure 10 reaching  $500 \text{ cm}^2$  for a total crystal mass of only to 40 kg.

The estimations of the line and continuum sensitivity are presented in Figure 11. They are calculated with a simulated germanium Compton detector and a  $10^6 \text{ s}$  acquisition time. The sensitivity for a 3% broadened gamma-ray line at 847 keV is also calculated and shown in Figure 11. On this figure is also shown the line sensitivity reaching  $5 \cdot 10^{-7} \text{ photon/s/cm}^2$  between 800 and 900 keV, to compare with the SPI instrument on board of INTEGRAL, launched in 2002, reaching  $2.5 \cdot 10^{-5} \text{ photon/s/cm}^2$  in the same energy band.

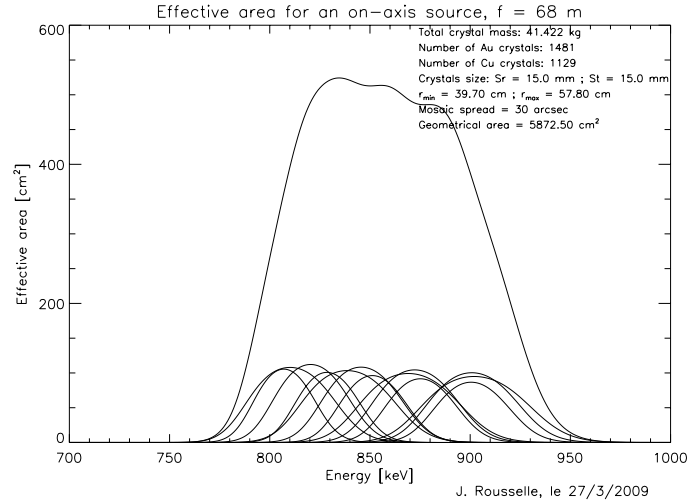


Figure 10. Effective area in function of energy of the lens proposed in the current DUAL mission concept. This design is given as a illustration for the gold crystals utilization.

## CONCLUSION

The lens performances are mainly due to the crystal quality, and the study of diffracting materials is thereby a major part of the instrumental development. Silver and gold crystals have been successfully measured confirming

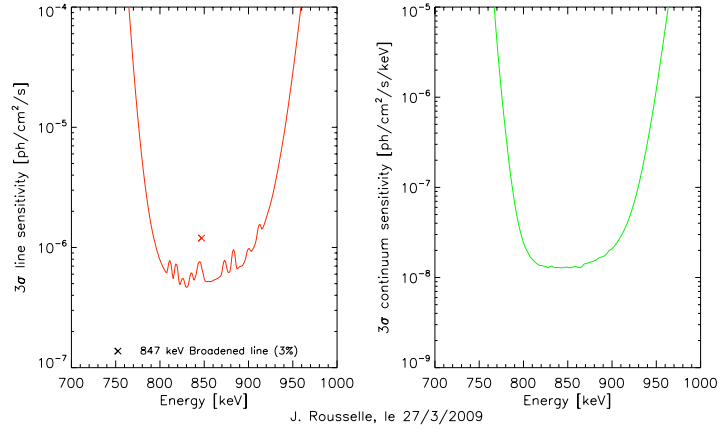


Figure 11. Line and continuum sensitivity for  $10^6$  s acquisition time and a Compton detector. The cross indicates the sensitivity for a 3% broadened line at 847 keV.

the predicted efficiencies of these materials. We have also shown that the measured performances are very close to the requirements for a space-borne Laue lens (a mosaicity around 30 arcsec, a reflectivity better than 20%).

Nevertheless, the Mohs hardness of gold and silver crystals is only 2.5, to compare with copper 3.0, and platinum 4.0. This low hardness needs a specific method to maintain the crystals on the lens structure to prevent their deformation or disorientation. The future developments of the Laue lens will focus on harder crystals than gold, trying to increase the reflectivity and on the mounting process of crystals with the realization of a prototype module.

## ACKNOWLEDGMENTS

The authors acknowledge continuing support from the French Space Agency CNES.

## REFERENCES

- [1] Winkler, C., Courvoisier, T. J.-L., Di Cocco, G., Gehrels, N., Giménez, A., Grebenev, S., Hermesen, W., Mas-Hesse, J. M., Lebrun, F., Lund, N., Palumbo, G. G. C., Paul, J., Roques, J.-P., Schnopper, H., Schönfelder, V., Sunyaev, R., Teegarden, B., Ubertini, P., Vedrenne, G., and Dean, A. J., “The INTEGRAL mission,” *Astronomy and Astrophysics* **411**, 1–6 (Nov. 2003).
- [2] Zachariasen, W. H., [*Theory of X-ray diffraction in crystals*], Dover Publication (1945).
- [3] Authier, A., [*Dynamical Theory of X-ray Diffraction*], Oxford University Press (2001).
- [4] Barriere, N., Rousselle, J., von Ballmoos, P., Abrosimov, N. V., Courtois, P., Bastie, P., Camus, T., Jentschel, M., Kurlov, V. N., Natalucci, L., Roudil, G., Brejnholt, N. F., and Serre, D., “Experimental and theoretical study of diffraction properties of various crystals for the realization of a soft gamma-ray laue lens,” *Journal of Applied Crystallography* (2009).
- [5] Malgrange, C., “X-ray propagation in distorted crystals : From dynamical to kinematical theory,” *Crystal Research and Technology* **37**, 654–662 (2002).
- [6] Mateck GmbH, Im Langenbroich 20 - D-52428 Juelich, Germany, [www.mateck.de](http://www.mateck.de).
- [7] Authier, A. and Malgrange, C., “Diffraction physics,” *Acta Crystallographica* **A54**, 806–819 (1998).
- [8] von Ballmoos, P., “A DUAL mission for nuclear astrophysics,” *Proc. SPIE* **7437** (2009).

## 4.7 Cristal mosaïque de plomb

En Mars 2009, un premier cristal de plomb, provenant de la société Mateck, fut mesuré sur ID15A à l'ESRF. Celui-ci était malheureusement de très mauvaise qualité avec de nombreuses dislocations. Toutefois, un second échantillon ayant la même provenance a été mesuré en Mai 2010 sur ID15A avec de biens meilleurs résultats. Ce second cristal, mesurant 23 mm de long pour 12 mm de diamètre, possède deux faces circulaires parallèles aux plan 111 (Figure 4.16 à gauche).

A l'aide d'un faisceau incident de 700 keV, mesurant 0.5 mm de haut et 0.1 mm de large, nous avons mesuré la mosaïcité du cristal sur cinq zones le long de son axe de croissance (ligne pointillée blanche sur la Figure 4.16). Le graphique 4.16 (à droite), présentant les résultats de ces mesures, montre une mosaïcité proche de 30 arcsec au centre du cristal, puis une forte dégradation sur les bords. La découpe du cristal de plomb semble ainsi l'avoir endommagé sur une profondeur d'au moins 6 mm. Deux exemples de RC, selon les plans 111 à 700 keV, sont présentées Figure 4.17. Ils correspondent à deux distances différentes le long de l'axe de croissance ; 16 et 21 mm, et montrent bien l'évolution de la qualité cristalline au bord du cristal.

Il semble ainsi possible de fabriquer des cristaux de plomb avec une qualité cristalline suffisante pour les utiliser sur une lentille de Laue. Cependant, ses propriétés mécaniques semblent poser problème lors de la découpe en rendant une grande partie du volume du cristal inutilisable.

## 4.8 Cristal mosaïque d'arséniure de gallium

En Mars 2009, nous avons eu l'occasion de mesurer un premier cristal d'arséniure de gallium (AsGa) sur l'instrument ID15A à l'ESRF. Cet échantillon, présenté Figure 4.18, se compose d'une section cylindrique de 47 mm de diamètre et de 25 mm d'épaisseur. Les propriétés de diffraction des plans 220 ont été étudiées sur cinq zones du cristal (rectangles blanc sur la Figure 4.18) à l'aide d'un faisceau X de 500 keV, de 0.5 mm de large et 1 mm de haut. Deux monochromateurs de Ge 311 courbés ont été utilisés pour obtenir des faisceaux successifs de 200, 300, 400, 500, 600 et 700 keV.

Les résultats de mesure sont présentés Figure 4.19 avec la mosaïcité moyenne sur les cinq points de mesure (à gauche) et la réflectivité (à droite) en fonction de l'énergie. Les barres d'erreurs représentent la déviation standard des différents points de mesure.

Le cristal d'AsGa possède une mosaïcité suffisamment faible ( $\Omega \leq 25 \text{ arcsec}$ ) avec des variations atteignant  $\pm 7 \text{ arcsec}$ . Son épaisseur de 25 mm serait optimale pour un faisceau d'environ 1200 keV, inaccessible à l'ESRF, ainsi la réflectivité, proche de 20 % à 700 keV, est encore loin de ce que pourrait faire un cristal plus fin.

De nouvelles mesures devront donc être menées sur des échantillons aux dimensions plus adaptées pour mesurer leur réflectivité. Néanmoins, l'AsGa semble pouvoir être fabriqué dès à présent avec une faible mosaïcité, compatible avec une utilisation sur une lentille de Laue.

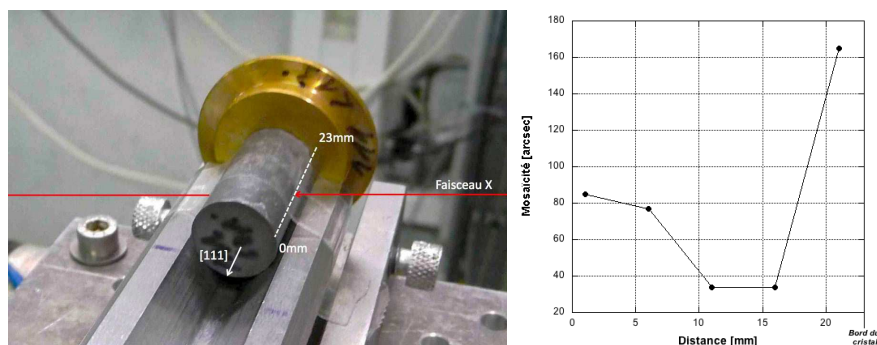


FIGURE 4.16 – A gauche : Photographie du monocristal de plomb mesuré à l’aide de ID15A à l’ESRF. Nous avons mesuré la mosaïcité selon les plans 111 avec un faisceau X de 700 keV, sur cinq points différents le long de l’axe de croissance (en pointillés blancs). A droite : Graphique présentant la mosaïcité du cristal en fonction de la distance le long de l’axe de croissance.

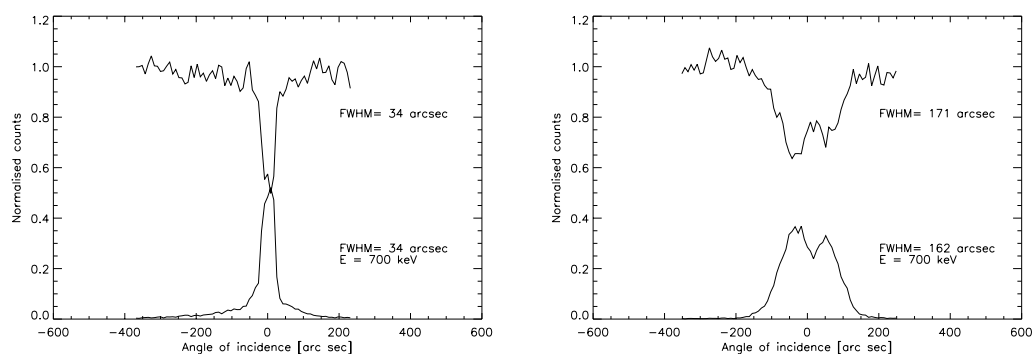


FIGURE 4.17 – Rocking curves du cristal de plomb 111 à 700 keV dans deux zones distinctes de l’échantillon ; à 7 mm (à gauche) et 2 mm (à droite) de l’extrémité collée sur le support circulaire.

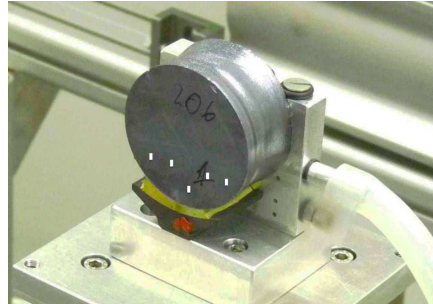


FIGURE 4.18 – Photographie du cristal d'AsGa sur le porte échantillon de l'instrument ID-15-A de l'ESRF. Les cinq zones de mesure sont représentées en blanc sur l'image, dans la partie inférieure du cristal. Nous avons utilisé un faisceau de 1 mm de haut et 0.5 mm de large. Les plans diffractant utilisés (220) sont verticaux et perpendiculaires à la face du cristal.

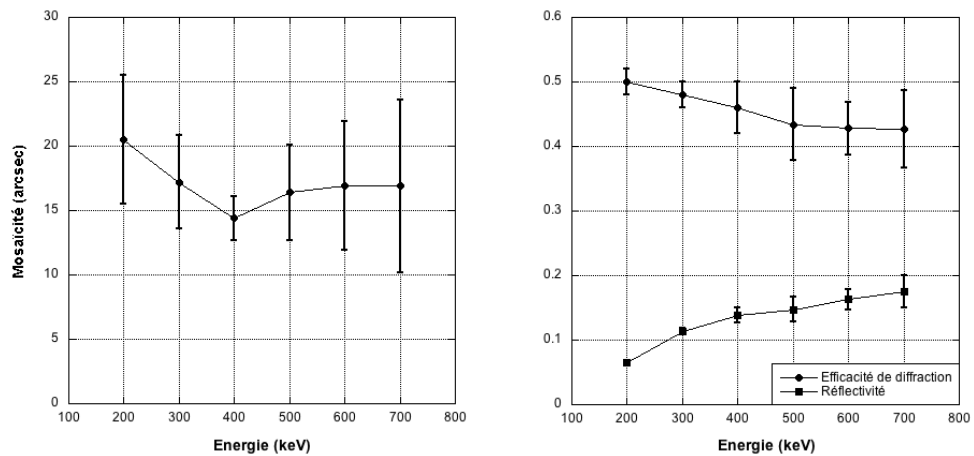


FIGURE 4.19 – Mosaïcité (à gauche) et efficacité de diffraction, réflectivité (à droite) des plans 220 de l'échantillon d'AsGa, en fonction de l'énergie. Les barres d'erreur représentent l'homogénéité du cristal (déviations standard sur cinq zones de mesure).





FIGURE 4.20 – Photographie du cristal de rhodium, fabriqué par la société Mateck. Il mesure 50 mm de long et 10 mm de diamètre. Les deux faces aux extrémités du cristal sont parallèles aux plans 220. Les rectangles noirs représentent les neuf zones du cristal qui ont été mesurées, avec une collimation de 1 mm de haut et 0.5 mm de large.

### 4.9 Cristal mosaïque de rhodium

---

Une section de boule de rhodium, de 50 mm de long et 10 mm de diamètre, a été prêtée par la société Mateck afin de mesurer ses capacités de diffraction et son homogénéité. Le cristal a été orienté afin de diffracter sur les plans (220), parallèles aux faces du cristal, avec un faisceau de 500 keV. La Figure 4.20 présente le cristal de rhodium avec les neuf zones mesurées le long de l'axe de croissance (rectangles noirs). La Figure 4.21 montre deux exemples de RCs, provenant de deux zones différentes. Le cristal présente ainsi une zone de très bonne qualité, avec une mosaïcité d'environ 30 arcsec et une efficacité de diffraction approchant 35% à 500 keV. Toutefois, une autre partie du cristal présente de fortes dislocations, le rendant inexploitable. Le rhodium est donc un matériau prometteur, pouvant être fabriqué avec une faible mosaïcité, mais dont l'homogénéité n'est pas encore satisfaisante. De nouvelles mesures devront avoir lieu en collaboration avec Mateck afin d'améliorer le processus de croissance.

### 4.10 Cristaux de platine et iridium

---

L'étude comparative des matériaux diffractant (présentée dans le chapitre 3) nous a poussé à étudier le groupe prometteur de l'iridium, platine et or. Les premiers échantillon d'or étant très performant, nous avons souhaité étudier le platine et l'iridium, aux propriétés cristallographiques très proche de l'or (paramètre de maille, numéro atomique, structure cristalline), mais aux meilleures propriétés mécaniques.

Tous les échantillons, d'or de platine et d'iridium provenaient du même fabricant, la société Mateck, mais avec des techniques de croissance différentes. L'or et le platine sont fabriqués par croissance Czochralski et l'iridium par la technique de la zone fondue (Floating Zone).

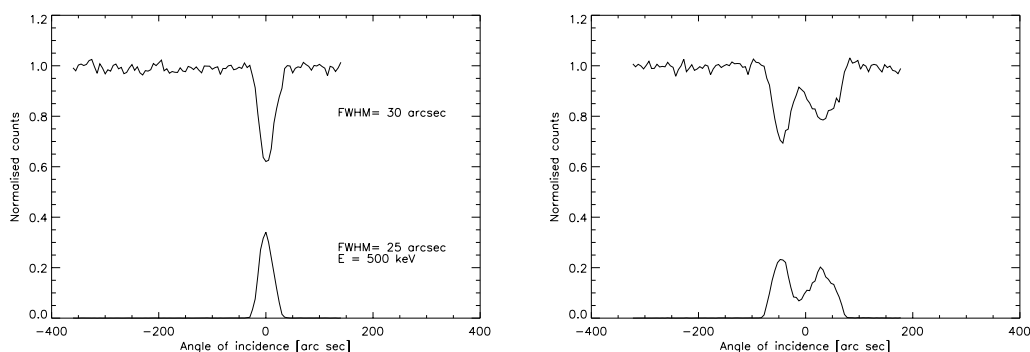


FIGURE 4.21 – Pics de diffraction à 500 keV selon les plans 220 au sein de deux zones différentes le long de l'axe de croissance du cristal de rhodium.

Malheureusement, les deux échantillons de platine et d'iridium possédaient une structure cristalline de très mauvaise qualité (mosaïcité de l'ordre du degré), très éloignée de celle des cristaux d'or. Toutefois, le nombre d'échantillons mesurés est encore insuffisant et de nouvelles mesures devront être menées pour conclure définitivement sur l'intérêt de ces matériaux pour une lentille de Laue.

## 4.11 Courbure mécanique d'un cristal de germanium

Parmi les différentes techniques de courbure des cristaux parfaits (évoqués en §2.4) la courbure par contraintes mécanique est la plus répandue. Toutefois, celle-ci impose un outillage lourd et volumineux, inadapté à une lentille de Laue. L'objectif des mesures qui suivent n'est donc pas d'étudier la technique de courbure mécanique, mais de fournir les données suffisantes pour pouvoir reproduire cette courbure par d'autres techniques, sans disposer d'un faisceau X-gamma. Ainsi, l'objectif était de relier la contrainte mécanique appliquée à un cristal de germanium et l'élargissement de sa RC, à l'aide d'un faisceau X de 300 keV sur ID15-A de l'ESRF (Figure 4.23). On peut ainsi mesurer la contrainte optimale permettant d'obtenir une largeur à mi-hauteur des RCs de 30 arcsec pour un cristal de germanium parfait de 15x15 mm de section et 5 mm d'épaisseur (Figure 4.22). La déformation induite sur la face opposée du cristal pourra alors être mesurée, puis reproduite hors faisceau par d'autres techniques, moins encombrantes, telle-que :

- dépôt de colle sur une des faces du cristal.
- attaque chimique sur une des faces du cristal.
- polissage d'une des faces du cristal.
- variation de vitesse de découpe du cristal sur les deux faces opposées de 15x15 mm.
- gravure de stries sur une des faces du cristal.

Le montage a également permis de confirmer la propagation de la courbure des plans 111 sur toute l'épaisseur du cristal (5mm).

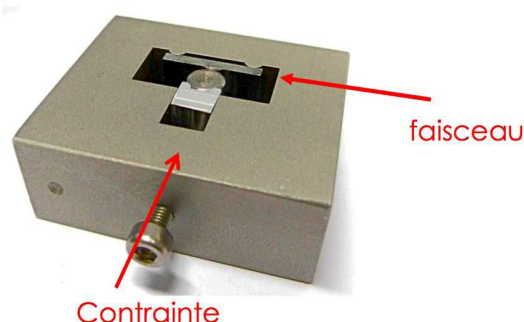


FIGURE 4.22 – Photographie du montage permettant la courbure mécanique d'un cristal de germanium parfait. Le cristal est positionné sur deux appuis linéaires tandis qu'un troisième vient faire pression au centre. La contrainte appliquée est contrôlée par une vis et un tournevis dynamométrique. Le cristal de germanium mesure 15x15 mm de section et 5 mm d'épaisseur. Le faisceau, de 0.1 mm de haut et 0.05 mm de large, pénètre le cristal par la tranche pour être diffracté par les plans courbes 111.

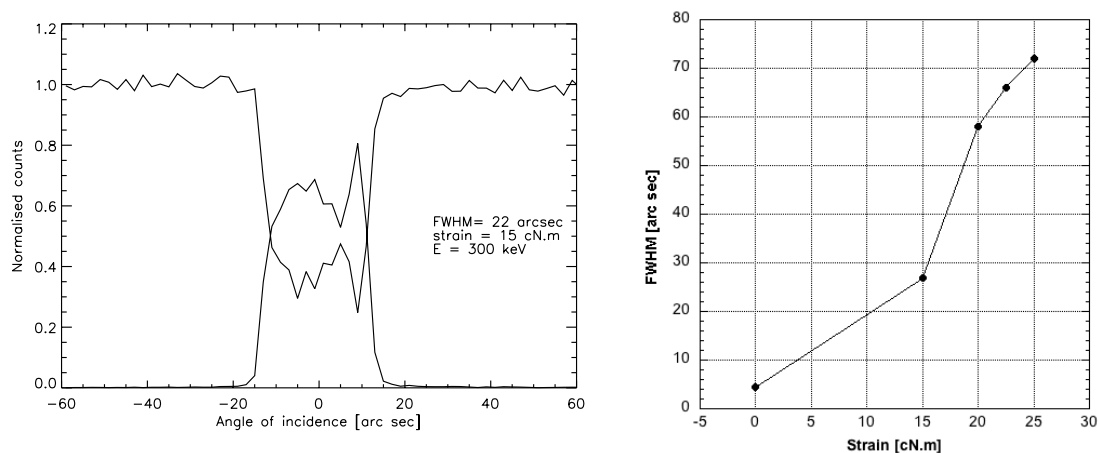


FIGURE 4.23 – A gauche : RC à 300 keV du cristal de germanium. Sa largeur à mi-hauteur est de 22 arcsec pour une contrainte de 15 cN.m. A droite : Graphique reliant la largeur à mi-hauteur des RC et la contrainte appliquée au cristal. Les mesures ont été effectuées sur l'instrument ID15-A de l'ESRF à l'aide d'un faisceau X de 300 keV d'une taille de 0.1x0.05 mm.

## 4.12 Conclusion

---

Au travers des multiples mesures effectuées, et grâce à la disponibilité d'instruments de mesure performants, nous avons pu déterminer nos capacités de production actuelles du grand nombre de cristaux de cuivre et SiGe nécessaire à la réalisation d'une lentille de Laue. Après de nombreux essais, les cristaux de cuivre peuvent enfin être produits avec des mosaïcités inférieures à 40 arcsec et une homogénéité satisfaisante. Les cristaux de SiGe courbes sont pour leur part très homogènes avec une largeur à mi-hauteur des RC proche de celle désirée. Toutefois, le gradient de concentration de germanium au sein de la boule n'est pas encore constant et provoque une rapide augmentation de la dispersion angulaire le long de son axe de croissance.

Nous avons également poursuivi l'étude prospective, débutée par les modélisations du chapitre 3, en débutant les mesures de différents matériaux diffractant. Parmi ces cristaux, certains ont montré d'excellentes qualités de diffraction tel-que l'or, l'argent le rhodium et l'arséniure de gallium, compatible avec une utilisation sur une lentille de Laue. Ces matériaux devront maintenant être étudiés plus en détail afin d'optimiser leur production et arriver au même niveau de développement que les cristaux de cuivre et de SiGe.



# 5

## Développement d'un prototype de lentille de Laue

La première partie de ce chapitre est consacrée à la présentation du prototype de lentille de Laue développé en collaboration avec le CNES et Thales Alenia Space. Ce prototype, prenant la forme d'un segment de lentille, doit permettre de mesurer la faisabilité technique de l'orientation des cristaux sur la structure de la lentille.

La suite du chapitre expose le protocole expérimental utilisé pour le contrôle du prototype ainsi que les résultats de mesures.

## CHAPITRE 5. DÉVELOPPEMENT D'UN PROTOTYPE DE LENTILLE DE LAUE

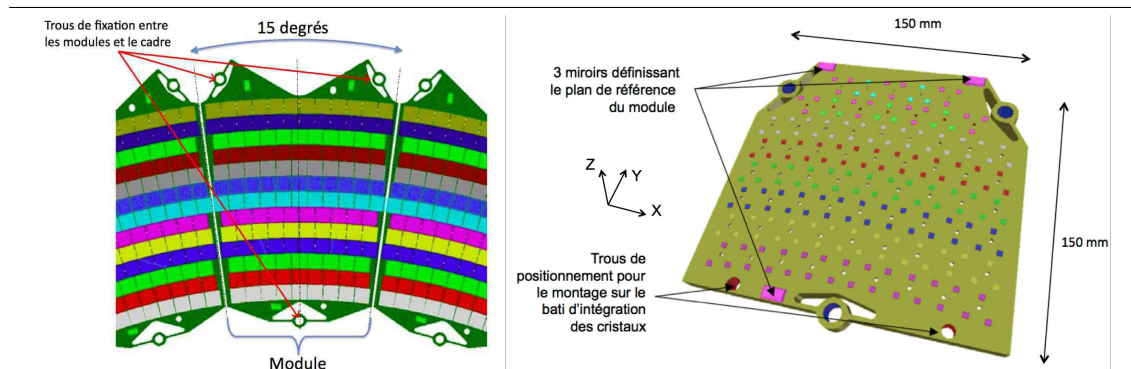


FIGURE 5.1 – Gauche : Agencement des modules pour former une lentille. Droite : Géométrie du module retenue pour la réalisation d'un prototype. Les cristaux ne sont pas représentés, seuls les séries de plots (en couleurs) permettant de les orienter sont visibles (c.f. §5.4). (Adapté de Thales Alenia Space ASP-07-TAS-341).

### 5.1 Objectifs du prototype

Un prototype de segment de lentille a été développé, réalisé et contrôlé en collaboration avec le CNES et Thales Alenia Space. Il vise à étudier le niveau de maturité des techniques d'orientation et de fixation des cristaux sur une structure de lentille spatialisable. Ce prototype a également pour objectif de mesurer l'impact de la fixation des cristaux sur leur qualité cristalline et d'étudier la résistance de la lentille à l'environnement spatial (vibrations, gradients thermiques).

### 5.2 Conception du support

La structure de la lentille a été conçue de manière modulaire, composée d'un agencement de sections d'environ 150x150 mm (Fig. 5.1 à gauche). Cette technique permet de réaliser simultanément plusieurs sections et d'en remplacer une en cas de défaut.

Le prototype prend la forme de l'un de ces modules dont les dimensions exactes sont visibles Figure 5.1 (droite). Cette figure présente la face avant du module où seront fixés les cristaux. Les anneaux sont visibles, de couleurs distinctes, constitués de séries de trois plots en quinconce permettant d'orienter les cristaux (les méthodes de fixation et d'orientation sont décrites en détail dans la section 5.4). L'agencement des plots, sur lesquels sont fixés les cristaux de 15x15 mm, autorise un taux de remplissage d'environ 95%. Les trois miroirs, situés sur le pourtour du module, permettent de définir son plan de référence optique, utile lors de l'usinage des plots (c.f. §5.4) et l'alignement des modules sur la structure porteuse.

Le prototype est usiné dans une unique pièce d'aluminium détensionnée et alvéolée, d'une épaisseur maximale de 1,5 mm. Les raidisseurs, d'une section de 1 mm et de 25 mm de haut, sont situés à l'arrière du module et placés entre les cristaux afin de limiter l'absorption.

Pour des raisons de coût, et contrairement au design initial présenté Figure 5.1

(gauche), le prototype réalisé par Thales Alenia Space est constitué d'anneaux non concentriques et de même rayon. Ainsi le module prototype n'est pas capable de focaliser les rayonnements gamma en un seul point focal.

---

## 5.3 Sélection des cristaux

---

Six cristaux de cuivre mosaïque et quatre de silicium-germanium à plans courbes ont été retenus pour être montés sur le module. Ils ont été sélectionnés pour leur homogénéité et leur reproductibilité de fabrication (c.f. §4.4).

Les cristaux de cuivre ont été fabriqués à l'aide de fours Bridgman (c.f. §4.2.1) par le groupe monochromateur de l'ILL (Grenoble) dirigé par Pierre Courtois, alors que les cristaux de silicium-germanium ont été fabriqués par Nikolai Abrosimos de l'IKZ à Berlin par la technique de croissance Czochralsky (c.f. §4.2.2).

La Figure 5.2 présente les performances mesurées après découpe des cristaux de cuivre, en termes de mosaïcité (en haut) et de réflectivité (en bas). Tous ces cristaux possèdent une mosaïcité inférieure à 30 arcsec et une efficacité de diffraction comprise entre 40 et 50%.

Les six pièces de cuivre de 15x15 mm de coté ont été sélectionnées, trois de 3 mm et trois de 9 mm afin d'étudier l'influence de l'épaisseur lors de leur fixation sur le module. Les cristaux de 3 mm sont optimisés pour diffracter une énergie de 300 keV, tandis que ceux de 9 mm sont plus efficaces à 850 keV. Toutefois cette dernière énergie n'a pas pu être atteinte à l'ESRF, c'est pourquoi les cristaux de 9 mm ont été mesurés à seulement 600 keV.

Les quatre cristaux de SiGe sélectionnés (359.1, 368.1a, 1b et 368.2) sont issus de la partie supérieure des boules 359 et 368, où l'on trouve une mosaïcité de 30 arcsec et une bonne homogénéité (Fig. 5.3). Ils mesurent chacun 15x15 mm et 23 mm d'épaisseur (Fig. 5.4) et ont été mesurés à 300 keV, l'énergie pour laquelle leur épaisseur est optimisée.

---

## 5.4 Principe d'orientation des cristaux

---

L'un des objectifs du prototype est de fixer les cristaux sur le module en orientant leurs angles de Bragg (rotation autour de l'axe X, Fig. 5.1 et 5.5) avec une tolérance de seulement 10 arcsec. Cette orientation est mesurée par l'angle  $\Psi$  entre le plan de référence du module (défini par les miroirs) et les plans de diffraction (111) des cristaux (Fig. 5.5).

Chacun des dix cristaux du prototype repose sur trois plots d'aluminium, usinés en tournage diamant afin de leur donner l'orientation souhaitée. Toutefois, les plans diffractant devant être alignés sont invisibles de l'extérieur et ne sont pas suffisamment alignés avec la surface externe du cristal lors de sa découpe. Ainsi, l'angle d'asymétrie ( $\alpha$ , c.f. §2.2.1) entre les plans diffractants et la normale à la surface externe du cristal, en contact avec les plots (Fig. 5.5), doit être connue, avec une précision allouée de 1 arcsec<sup>1</sup>.

---

1. Document TAS : AASG-06-OS/CO/I-8664187.



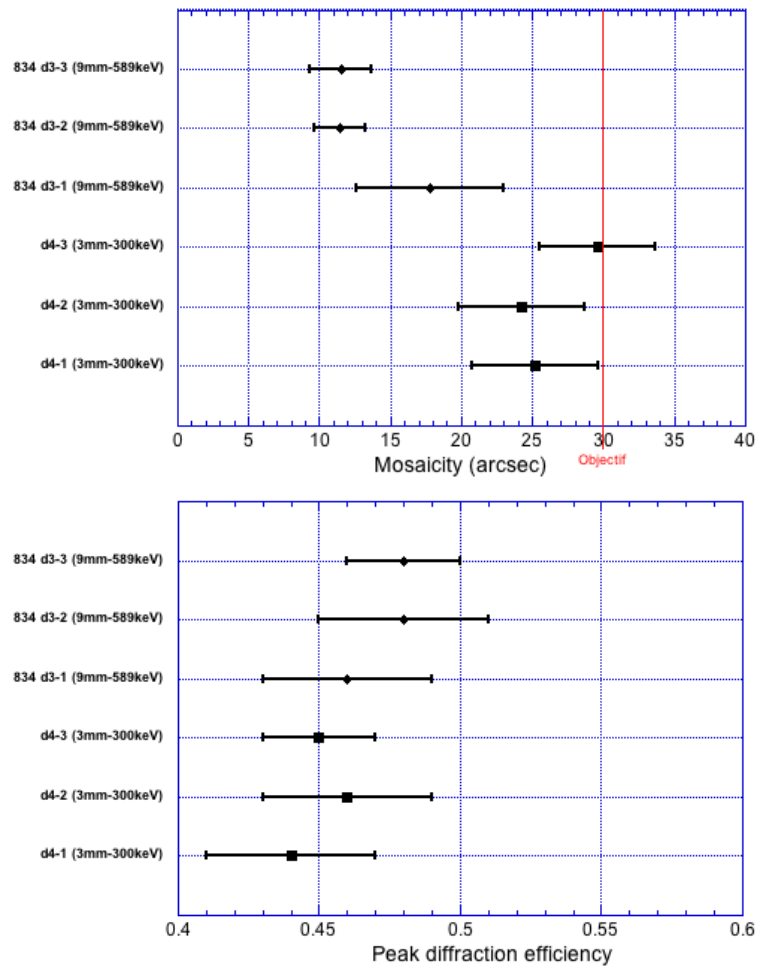


FIGURE 5.2 – Mesures de la mosaïcité (en haut) et de l'efficacité de diffraction (en bas) des cristaux de cuivre (111) sélectionnés pour être montés sur le module. Ces mesures ont été effectuées sur la ligne ID15A de l'ESRF en Mai 2008. Les barres d'erreurs représentent l'écart type des mesures sur cinq zones des cristaux.

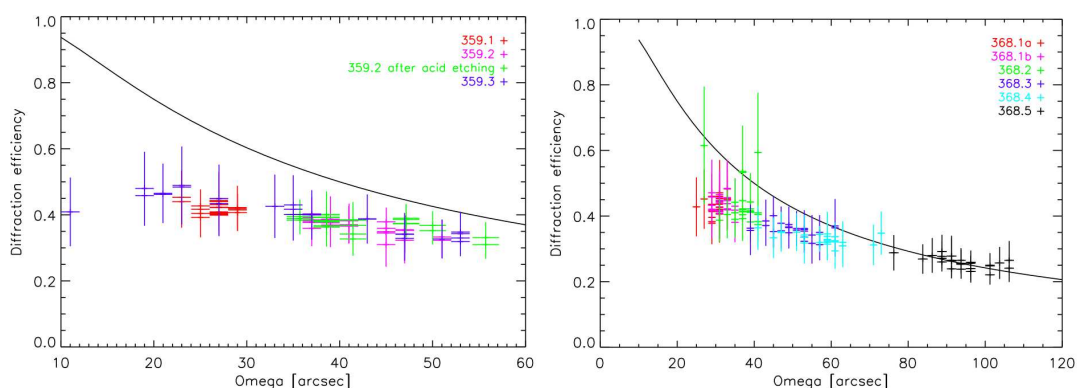


FIGURE 5.3 – Efficacité de diffraction en fonction de omega (dispersion angulaire) pour les cristaux SiGe (111) des boules 359 (à gauche) et 368 (à droite). Ces mesures ont été effectuées sur la ligne ID15A de l'ESRF en Mai 2008. Un total de 26 mesures par cristal ont été effectuées. Les cristaux 359.1, 368.1a, 1b et 368.2 ont été sélectionnés pour être fixé sur le module.

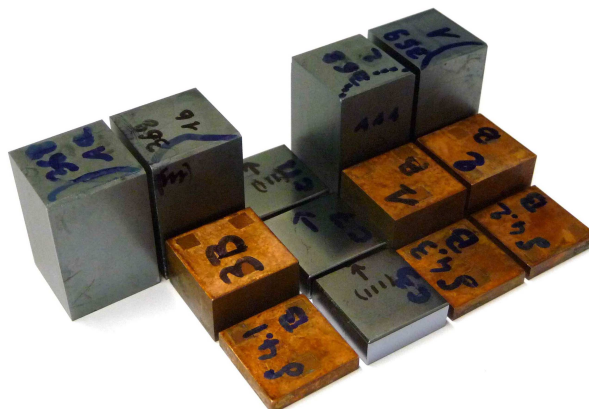


FIGURE 5.4 – Photographie des cristaux de cuivre et SiGe sélectionnés pour être montés sur le module prototype. Les cristaux mesurent 15x15 mm de côté et ont une épaisseur de 3 et 9 mm pour le cuivre et 23 mm pour le SiGe. Les positions affichées sont celles initialement prévues sur le module. L'utilité des cristaux de silicium, situés au centre, est décrite dans la section traitant du contrôle du module.

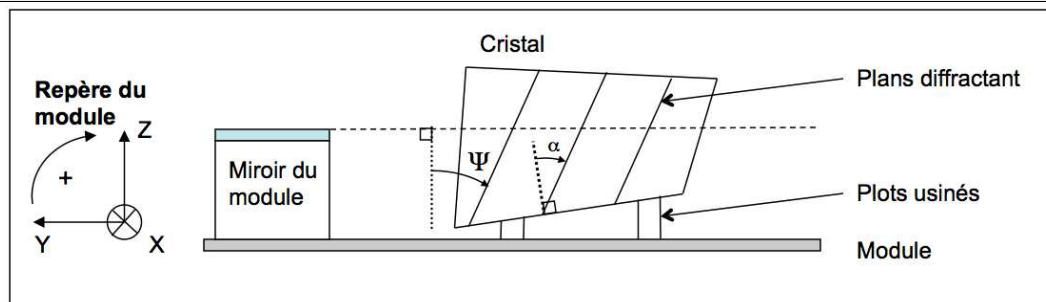


FIGURE 5.5 – Schéma de principe de l'orientation  $\Psi$  des plans diffractant par rapport au plan de référence du module, défini par ses trois miroirs. Dans le cas idéal (si le module n'est pas déformé), cet angle ne dépend que de l'angle d'asymétrie  $\alpha$  entre les plans diffractant et la surface externe du cristal, en contact avec les plots.

Les dix cristaux du module doivent donc être caractérisés une première fois à l'aide d'un faisceau x pour mesurer l'angle d'asymétrie ( $\alpha$ ), avant d'usiner chacun des plots en conséquence.

### 5.4.1 Mesures des angles d'asymétrie des cristaux

La surface externe des cristaux est définie par leurs trois zones en contact avec les plots du module. Comme l'angle d'asymétrie est l'angle entre les plans diffractant (111 pour tous les cristaux du module) et cette surface externe, le montage permettant sa mesure doit parfaitement reproduire les points d'appui du module prototype.

Le support présente deux zones munies de trois plots séparés de 7 mm, est de trois contacts ponctuels latéraux (Fig. 5.7) pour un montage isostatique des cristaux.

Les deux séries de plots ont des positions opposées et correspondent aux deux configurations possibles sur le module (en quinconce Fig. 5.7). Le cristal est alors maintenu par un flux d'air, aspiré par un orifice (effet Venturi) situé entre les plots en inox, usinés au tournage diamant.

L'angle d'asymétrie est mesuré en relatif en retournant le cristal à 180 degrés sur la surface de référence, en contact avec les plots (Fig. 5.6 en bas à droite). Toutefois, comme la surface des cristaux n'est pas suffisamment plane, le retournement des cristaux modifierait les zones de contact avec les plots et donc l'angle d'asymétrie.

Afin de pouvoir effectuer les mesures sans retourner les cristaux, la normale aux plots du montage a été étalonnée par retournement d'un cristal dont la surface est polie à  $\lambda/40$  (soit 15,8 nm). Pour simplifier la réalisation de cet étalon, un bloc de verre poli a été collé sur un cristal parfait de silicium et de cuivre (un étalon pour chaque matériau). La surface polie à  $\lambda/40$  introduit une incertitude inférieure à 0.5 arcsec sur la mesure de l'angle d'asymétrie.

La Figure 5.6 présente le principe de l'étalonnage par retournement à 180 degrés sur la surface de référence (qui sera en contact avec les plots).

Le cristal étalon, à l'endroit sur son support (Fig. 5.6 en haut à droite), est placé une première fois en position de diffraction, avant de le retourner de 180 degrés sur

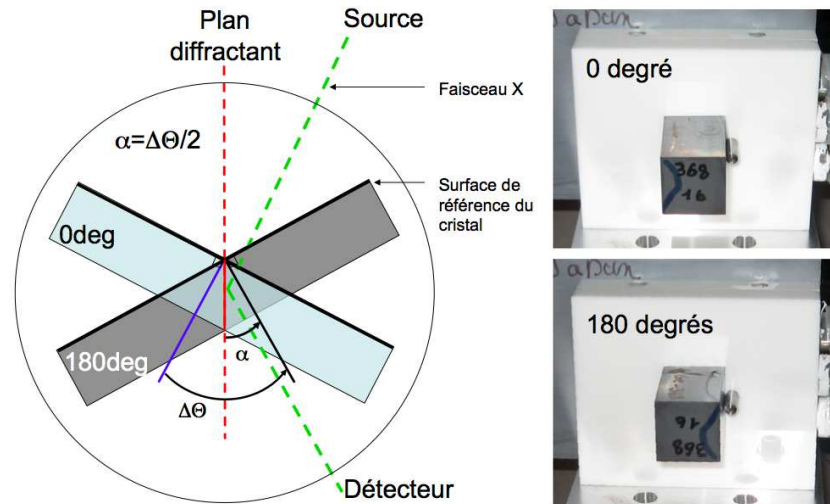


FIGURE 5.6 – Gauche : Schéma de principe de la mesure de l'angle d'asymétrie  $\alpha$  par retournement du cristal à 180 degrés sur la surface de référence, qui sera en contact avec les plots du module. Le goniomètre est ici vue de dessus. Droite : Photo du montage en céramique sur lequel est placé successivement un cristal de SiGe à 0 et 180 degrés. Le cristal est maintenu par aspiration avec les plans diffractant verticaux tandis que le faisceau traverse le cristal et le montage.

la surface de référence (Fig. 5.6 en bas à droite). Le goniomètre sur lequel repose le cristal doit alors être tourné d'un angle  $\Delta\theta = 2\alpha$  pour ramener les plans dans la même position de diffraction.

Les surfaces en contact avec les plots sont brutes de découpe (électroérosion) pour les cristaux de cuivre et polies mécaniquement pour les cristaux de SiGe.

La médiane des pics de diffraction à 0 et 180 degrés du cristal étalon est mesurée par rapport à un cristal de silicium parfait, placé sur la face arrière du montage, afin de se prémunir des mouvements du goniomètre lors de la manipulation du montage (Fig. 5.8). Cette médiane représente la position théorique du faisceau diffracté si l'angle d'asymétrie était nul, c'est à dire perpendiculaire aux plots du montage. Pour un matériau donné, cette médiane permet de caractériser la surface d'appui avant de mesurer l'un des cristaux du module, sans retournement.

Les angles d'asymétrie des dix cristaux du module peuvent ensuite être mesurés en les positionnant sur l'une des deux séries de plots correspondant à la position des cristaux sur le module.

Le tableau 5.1 présente les angles d'asymétrie, directement mesurés entre la médiane et le pic de diffraction du cristal. Nous avons utilisé un faisceau de photons à 184 keV, faiblement divergeant ( $< 1$  arcsec, monochromateur de Si(220)), et l'instrument GAMS-5 de l'ILL (§4.3.2).

Au cours des différents essais de mesures, la présence de poussière s'est révélée problématique. Celle-ci venait se placer entre les plots du montage et les cristaux, faussant les mesures. Une hotte à flux laminaire a donc été utilisée pour filtrer l'air tandis que de nombreuses remises en positions ont permis de s'assurer du faible impact des poussières restantes.



FIGURE 5.7 – Photographie du montage utilisé pour mesurer les angles d'asymétrie. Les deux séries de plots et contacts ponctuels latéraux sont identiques à ceux employés lors du collage par Thales Alenia Space. Les deux séries de plots ont des positions opposées et correspondent aux deux configurations possibles sur le module (en quinconce Fig. 5.1 à droite). Un flux d'air constant est aspiré du trou central et maintient le cristal par effet Venturi sur les plots en inox, usinés au tournage diamant.

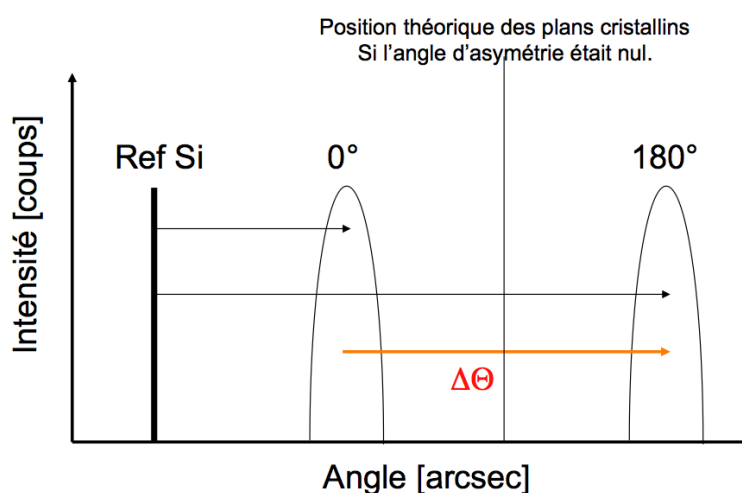


FIGURE 5.8 – Pics de diffraction du cristal étalon à l'endroit puis à l'envers sur les plots du montage. Les positions des pics sont mesurées par rapport à un cristal de silicium parfait, placé sur la face arrière du montage, afin de se prémunir des mouvements du goniomètre lors des manipulations. Cette mesure permet de mesurer la médiane, la position théorique du faisceau diffracté si l'angle d'asymétrie était nul, c'est à dire perpendiculaire à la surface des plots.

| Nom des cristaux    | $\alpha$ (arcsec) | $\sigma_\alpha$ (arcsec) |
|---------------------|-------------------|--------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | 1907,7            | 1,4                      |
| Cu $\delta$ 4.2     | 1913,7            | 2,7                      |
| Cu $\delta$ 4.3     | 1795,6            | 0,9                      |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | 499,0             | 1,4                      |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | 399,8             | 2,0                      |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | 403,5             | 1,5                      |
| SiGe 368.1a         | -722,0            | 0,8                      |
| SiGe 368.1b         | -874,5            | 0,6                      |
| SiGe 368.2          | -104,2            | 1,0                      |
| SiGe 359.1          | -3458,1           | 0,7                      |

TABLE 5.1 – Résultats des mesures d'angles d'asymétrie ( $\alpha$ ) des cristaux du module. Ces angles sont exprimés dans le repère du module avec les incertitudes associées ( $\sigma_\alpha$ ).

Les incertitudes de mesures  $\sigma_\alpha$  exprimées dans le Tableau 5.1 sont calculées après de nombreuses remises en position des cristaux sur les plots. L'écrouissage de la surface de cuivre ainsi que les poussières restantes sont ainsi responsables des variations d'orientation du cristal sur les plots du montage.

### 5.4.2 Usinage des plots du module

Connaissant les angles d'asymétrie des cristaux, les plots du module peuvent être usinés de manière à orienter les plans diffractants selon l'angle souhaité. L'usinage a été effectué par tournage diamant, sur le module en position horizontale, avec une précision de 1 arcsec sur l'orientation des trois plots.

D'après le design original du module, les plans diffractant des dix cristaux devaient être perpendiculaires au plan de référence, toutefois pour des raisons d'agenda, l'usinage des plots a été effectué avant les mesures finales des angles d'asymétrie. Ainsi, les valeurs d'usinage des plots, figurant dans le Tableau 5.2, sont arbitraires.

Les erreurs d'usinage figurant dans le Tableau 5.2 ont été mesurées optiquement lors du desserrage du module et sa mise en position verticale. Ces erreurs sont signées dans le repère du module et varient de 0,3 à 10,6 arcsec. Ainsi plusieurs valeurs dépassent la tolérance globale d'orientation des cristaux. Elles sont principalement dues aux contraintes et déformations subies par le module lors de l'usinage. Elles pourraient toutefois être réduites en optimisant la taille des raidisseurs sur la face arrière du module.

### 5.4.3 Collage des cristaux sur le module

Le choix du type de fixation des cristaux sur le module devait répondre à trois impératifs : ne pas déformer la maille cristalline de façon notable, garantir un contact métal-métal stable et résistant aux vibrations et enfin être spatialisable.

Toutes les étapes de positionnement et de fixation, décrites dans le paragraphe qui suit, ont eu lieu dans l'environnement contrôlé d'une salle blanche de classe 1000

## CHAPITRE 5. DÉVELOPPEMENT D'UN PROTOTYPE DE LENTILLE DE LAUE

| Nom des cristaux    | Usinage demandée<br>(arcsec) | Usinage réel<br>(arcsec) | Erreur d'usinage<br>(arcsec) |
|---------------------|------------------------------|--------------------------|------------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | 509,3                        | 519,4                    | 10,1                         |
| Cu $\delta$ 4.2     | 3464,3                       | 3463,6                   | -0,7                         |
| Cu $\delta$ 4.3     | 138,6                        | 142,2                    | 3,6                          |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | 601,4                        | 606,7                    | 5,3                          |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | 558,1                        | 566,6                    | 8,5                          |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | 612,1                        | 615,6                    | 3,5                          |
| SiGe 368.1a         | 738,4                        | 737,8                    | -0,6                         |
| SiGe 368.1b         | 891,3                        | 891,6                    | 0,3                          |
| SiGe 368.2          | 585,6                        | 596,2                    | 10,6                         |
| SiGe 359.1          | 526,8                        | 534,8                    | 8,0                          |

TABLE 5.2 – Valeurs d'usinage demandées des plots du module et valeur mesurée après usinage. Ces angles sont exprimés dans le repère du module. Les cristaux associés aux valeurs d'usinage tiennent compte de leur position définitive décrites dans les paragraphes suivants.

au sein des locaux de Thales Alenia Space. Le module était fixé horizontalement sur un marbre afin que les cristaux reposent sur les plots par gravité.

Le positionnement précis des cristaux selon les axes X et Y est assuré par une réglette piontée sur le module, et munie de contacts latéraux ponctuels identiques au montage utilisé lors des mesures d'angles d'asymétrie<sup>2</sup>.

Avant le collage du cristal, plusieurs mises en positions et nettoyages successifs, sous lunette autocollimatrice, ont permis de déterminer la position optimale (sans poussière) du cristal.

La fixation des cristaux a fait appel à une colle spatialisable, de type optique<sup>3</sup> appliquée manuellement en forme de Y entre les plots. Juste après le positionnement définitif du cristal, la lunette autocollimatrice a enregistré la déviation par rapport à la position optimale (colonne "Décalage" du Tableau 5.3), ainsi que la dérive au cours du temps liée à la polymérisation de la colle (colonne "Dérive" du Tableau 5.3). Cette dérive peut être expliquée par la forme en Y de l'empreinte de la colle, non symétrique selon l'axe X. Le surplus de colle d'un côté du cristal pourrait alors le faire pivoter autour de cet axe et le désorienter. Une simple rotation à 90 degrés des plots et de l'empreinte de la colle pourrait toutefois déplacer le problème autour de l'axe Y, moins contraignant pour l'orientation des cristaux.

La Figure 5.9 présente le module prototype après le collage de tous les cristaux. Par rapport aux emplacements initiaux (Fig. 5.4), certains cristaux ont été changés de place afin de faciliter leur manipulation.

2. Les techniques exactes de montage et de collage sont soumises au secret industriel par Thales Alenia Space

3. La référence exacte est soumise au secret industriel par Thales Alenia Space.



| Nom des cristaux    | Décalage (arcsec) | Dérive du collage (arcsec) |
|---------------------|-------------------|----------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | $-1,3 \pm 2,2$    | $-18,9 \pm 3,2$            |
| Cu $\delta$ 4.2     | $-78,3 \pm 4,2$   | $-3,8 \pm 5,2$             |
| Cu $\delta$ 4.3     | $3,9 \pm 4,2$     | $-8,6 \pm 5,2$             |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | $1,2 \pm 2,2$     | $-11,3 \pm 3,2$            |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | $1,8 \pm 2,2$     | $0,8 \pm 3,2$              |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | $-1,7 \pm 2,2$    | $-17,3 \pm 3,2$            |
| SiGe 368.1a         | $-1,7 \pm 4,2$    | $4,9 \pm 5,2$              |
| SiGe 368.1b         | $-2,1 \pm 4,2$    | $-14,3 \pm 5,2$            |
| SiGe 368.2          | $-1,6 \pm 2,2$    | $4,9 \pm 3,2$              |
| SiGe 359.1          | $4,0 \pm 2,2$     | $1,45 \pm 3,2$             |

TABLE 5.3 – Mesures au théodolite des positions angulaire des cristaux autour de l'axe X (angle de Bragg). La colonne "Décalage" présente l'écart entre la position souhaitée (sans poussière), obtenue après plusieurs remises en position (avant le collage), et la position juste après collage. La dérive des cristaux lors de la polymérisation de la colle est également enregistrée. Les incertitudes, associées aux mesures, proviennent de la stabilité du théodolite.

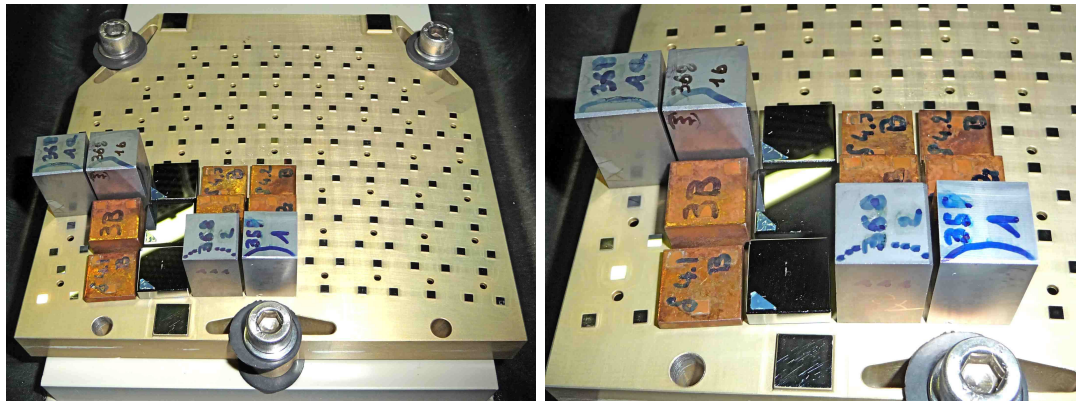


FIGURE 5.9 – Photographie du module complet après collage dans sa mallette de transport. Par rapport aux positions initiales (Fig. 5.3), plusieurs cristaux ont changé de place pour pouvoir plus facilement les manipuler.



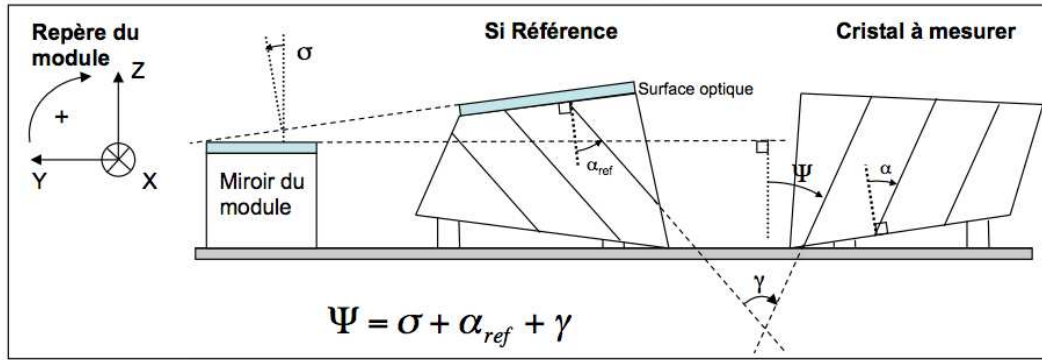


FIGURE 5.10 – Schéma de principe du contrôle de l'orientation des cristaux du module ( $\Psi$ ) par rapport à son plan de référence. Ce contrôle fait appel à un cristal parfait de silicium poli pour faire le lien entre la mesure optique ( $\sigma$ ) et X ( $\gamma$ ). Pour cela l'angle d'asymétrie ( $\alpha_{ref}$ ) doit être connu.

## 5.5 Contrôle du module - Orientation et mosaïcité

### 5.5.1 Principe de mesure

Le contrôle du module doit permettre de mesurer l'orientation des plans diffractant et de les comparer aux orientations demandées. Ce contrôle est effectué trois fois, après collage, après vibrations et après cyclage thermique. Il est à chaque fois complété par des mesures de mosaïcité afin de suivre les déformations éventuelles du réseau cristallin.

L'orientation des plans cristallin doit être mesurée par rapport au repère du module, défini par ses trois miroirs. Ce contrôle associe donc des faisceaux optiques et X et ne peut pas être effectué en une seule mesure.

La Figure 5.10 présente la technique de mesure utilisée, faisant appel à un cristal de silicium parfait muni d'une face polie. Ce cristal possède un angle d'asymétrie, par rapport à la surface polie ( $\alpha_{ref}$ ), mesuré avec précision par la technique décrite au paragraphe 5.4.1. Il permet ainsi de faire le lien entre les mesures optiques ( $\sigma$ ), entre les miroirs de module et la surface optique du cristal de silicium parfait, et les mesures X (angle  $\gamma$ ), entre les plans diffractants du silicium parfait et ceux du cristal à mesurer.

Trois cristaux de silicium parfait ont été utilisés (Fig. 5.9), dont les angles d'asymétrie ( $\alpha_{ref}$ ) ont été mesurés en même temps que les autres cristaux du module. Ils ont été fixés en utilisant la méthode décrite dans le paragraphe 5.4.3 selon des angles arbitraires. Ainsi l'orientation des cristaux jouxtant les siliciums parfaits est définie par :  $\Psi = \sigma + \alpha_{ref} + \gamma$ . L'orientation des autres cristaux est alors calculée de proche en proche.

### 5.5.2 Protocole expérimental

Les mesures des angles  $\gamma$  ainsi que les mesures de mosaïcité ont eu lieu sur la ligne PN3 du réacteur nucléaire scientifique de l'ILL à l'aide de l'instrument GAMS-

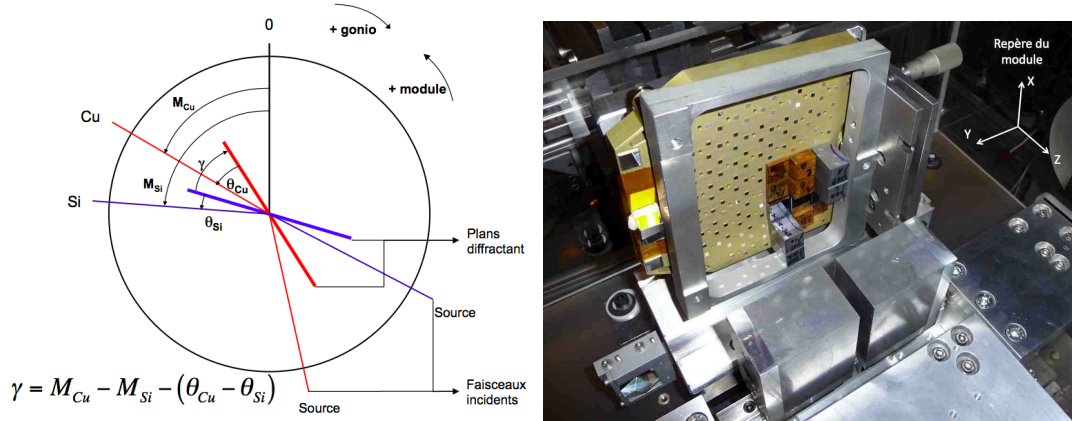


FIGURE 5.11 – Gauche : Schéma explicatif du calcul de l'angle ( $\gamma$ ) entre les plans diffractant sur le goniomètre de GAMS-5. Cet angle fait appel aux mesures des positions des pics de diffraction ( $M$ ) ainsi qu'aux angles de Bragg ( $\theta$ ) si les matériaux ou plans diffractant sont différents. Droite : Photographie du module fixé sur un cadre en aluminium et une platine tangente, sur l'instrument GAMS-5 de l'ILL. Le repère du module est rappelé en haut à droite.

5. Nous avons utilisé une source de gadolinium émettant un faisceau monochromatique de 182 keV et faiblement divergent horizontalement ( $< 1$  arcsec) grâce à un monochromateur de silicium parfait (Si 220).

L'angle entre les plans diffractant de deux cristaux adjacents ( $\gamma$ ) est calculé en mesurant l'écart angulaire entre leur pic de diffraction respectif ( $M$ ), et en tenant compte des angles de Bragg ( $\theta$ ) si les matériaux ou plans diffractant sont différents (Fig. 5.11 à gauche). Ces deux mesures successives des pics de diffraction interdisent toute manipulation du module afin de ne pas provoquer une rotation du goniomètre. Ainsi un faisceau de 1 cm de côté et 3 cm de haut est collimaté pour couvrir plusieurs cristaux en même temps, et seul un collimateur vertical permet de passer d'un cristal à l'autre sans toucher au goniomètre.

Le module est maintenu en position verticale sur un cadre en aluminium, tandis qu'une platine tangente permet de compenser la courbure des anneaux par une rotation autour de l'axe Z (Fig. 5.11 à droite). Le rayon du module situé entre les deux cristaux à mesurer est ainsi placé horizontalement afin de positionner les plans diffractant des deux cristaux, le plus verticalement possible. L'erreur commise par la courbure des anneaux est alors estimée inférieure à 1 arcsec.

Un premier contrôle du prototype a mis en évidence la flexibilité du module. Celui-ci était maintenu sur son cadre en aluminium par trois vis munies de rondelles plates en Téflon et de ressorts, afin de limiter les contraintes qui lui sont appliquées. Ces contraintes étaient toutefois impossibles à mesurer et non reproductibles. Ainsi des variations de serrage ont provoquées des fluctuations de l'alignement des cristaux pouvant atteindre 80 arcsec sur le bord du module.

Lors des mesures suivantes, l'utilisation de rondelles sphériques (ou rotulées) et d'un tournevis dynamométrique ont permis d'éliminer l'influence du serrage du module sur son cadre. Le serrage variant de 15 à 40 cN.m n'a pas eu d'impact visible

## CHAPITRE 5. DÉVELOPPEMENT D'UN PROTOTYPE DE LENTILLE DE LAUE

---

sur l'orientation des cristaux, la dernière valeur de 40 cN.m a ainsi été utilisée lors des mesures suivantes.

Toutefois lors de ces nouvelles mesures un nouveau paramètre, négligé jusqu'ici, s'est révélé crucial ; la verticalité du module. Lors de leur fixation, l'orientation des cristaux autour de l'axe Y (Fig. 5.11) ne se base que sur leur face externe, puisque leur découpe est plus précise (1 arcmin) que la tolérance accordée autour de cet angle (15 arcmin).

Toutefois, la géométrie particulière des mesures, liée à la courbure des anneaux, amène les deux cristaux mesurés à diffracter respectivement vers le haut et vers le bas. Le détecteur n'étant capable de mesurer que la projection des faisceaux diffractés sur l'axe Y, une rotation du module autour de cet axe provoque un écartement artificiel des faisceaux diffractés.

Pour palier à ce problème, un niveau laser a été utilisé pour positionner le module verticalement à plus ou moins 100 arcsec. L'incertitude sur la position verticale provoque ainsi une incertitude sur les mesures de l'angle entre les plans cristallins, estimée à 5 arcsec.

### 5.5.3 Contrôle après collage

**Orientation** Pour des raisons de disponibilité de l'instrument GAMS-5, le module n'a pas pu être contrôlé dans la configuration optimale entre le collage et les essais vibration. Le module était alors incliné de 2 degrés vers le détecteur. Des mesures après les essais vibration, utilisant la même configuration, ont tout de même permis de mesurer les déplacements des plans cristallins induits par les vibrations. Puis de nouvelles mesures, cette fois dans la configuration optimale, ont permis de remonter aux orientations initiales des plans diffractants.

Ces mesures indirectes ont pour conséquences d'augmenter de manière significative l'incertitude des mesures d'orientation effectuées après collage (Tab. 5.4).

Le Tableau 5.4 permet de constater la différence de précision d'alignement atteinte entre les cristaux de cuivre et de SiGe. La moyenne des précisions d'orientation des cristaux de cuivre (valeurs absolues des écart entre l'angle mesuré et demandé,  $\Delta_{M-D}$ ), indépendante de leurs épaisseurs, est de 34 arcsec avec un écart type de 15 arcsec. Cette dispersion est du même ordre de grandeur que la somme quadratique des incertitudes de mesure, estimée à 10 arcsec environ. Les erreurs d'usinage et de collage, mesurées à la lunette autocollimatrice, permettent d'expliquer une partie de cette moyenne. Celle-ci passe à 18 arcsec en tenant compte de ces erreurs, tandis que l'écart type augmente à 23 arcsec. Ainsi la précision d'orientation des cristaux de cuivre sort des spécifications initiales, mais en reste relativement proche. Les erreurs d'orientations ne peuvent être expliquées qu'en partie par les erreurs d'usinage et collage, d'autres sources d'erreurs restent donc à identifier.

Les cristaux SiGe sont orientés avec une bien meilleure précision, grâce à leur épaisseur et leur dureté plus importante. La surface polie des cristaux, en contact avec les plots pourrait également intervenir dans ces bons résultats. La moyenne des écarts à l'orientation demandée (valeurs absolues des  $\Delta_{M-D}$ ) est ainsi centrée à 11 arcsec avec un écart type de seulement 13 arcsec. Les erreurs d'usinage et collage ne peuvent pas expliquer cette désorientation, dont la moyenne reste à 11 arcsec (avec

## 5.5. CONTRÔLE DU MODULE - ORIENTATION ET MOSAÏCITÉ

| Nom des cristaux    | $\Psi$ Mesurée (arcsec) | $\Psi$ Demandée (arcsec) | $\Delta_{M-D}$ (arcsec) | $\Psi$ Attendue (arcsec) | $\Delta_{M-A}$ (arcsec) |
|---------------------|-------------------------|--------------------------|-------------------------|--------------------------|-------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | $2446 \pm 7$            | $2417 \pm 1$             | $29 \pm 7$              | $2447 \pm 3$             | $-1 \pm 8$              |
| Cu $\delta$ 4.2     | $5425 \pm 10$           | $5378 \pm 3$             | $47 \pm 10$             | $5459 \pm 4$             | $-34 \pm 11$            |
| Cu $\delta$ 4.3     | $1964 \pm 7$            | $1934 \pm 1$             | $30 \pm 7$              | $1942 \pm 4$             | $22 \pm 8$              |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | $1132 \pm 7$            | $1100 \pm 1$             | $32 \pm 7$              | $1116 \pm 3$             | $16 \pm 8$              |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | $969 \pm 10$            | $958 \pm 2$              | $11 \pm 10$             | $964 \pm 3$              | $5 \pm 11$              |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | $1070 \pm 7$            | $1016 \pm 2$             | $54 \pm 7$              | $1038 \pm 3$             | $32 \pm 8$              |
| SiGe 368.1a         | $32 \pm 9$              | $16 \pm 1$               | $16 \pm 9$              | $13 \pm 4$               | $19 \pm 10$             |
| SiGe 368.1b         | $28 \pm 7$              | $17 \pm 1$               | $11 \pm 7$              | $34 \pm 4$               | $-6 \pm 8$              |
| SiGe 368.2          | $486 \pm 7$             | $481 \pm 1$              | $5 \pm 7$               | $489 \pm 3$              | $-3 \pm 8$              |
| SiGe 359.1          | $-2944 \pm 10$          | $-2931 \pm 1$            | $-13 \pm 10$            | $-2929 \pm 3$            | $-15 \pm 10$            |

TABLE 5.4 – Tableau de synthèse des mesures d’orientations des plans diffractant après le collage des cristaux. Les mesures sont comparées aux valeurs initialement demandées  $\Delta_{M-D}$  et attendues  $\Delta_{M-A}$  (orientation demandée corrigées des erreurs mesurées d’usinage et de collage, Tab. 5.2 et 5.3).

une dispersion de 14 arcsec) même en tenant compte de ces erreurs. Ainsi, malgré les erreurs commises lors de la réalisation du prototype, les cristaux de SiGe restent très proches des spécifications initiales ( $\pm 10$  arcsec), après leur collage.

**Mosaïcité** Le tableau 5.5 présente la mosaïcité des cristaux, mesurées avant et après leur collage. Ces mesures ont eu lieu sur GAMS-4, avant collage puis GAMS-5 après collage, avec la même configuration instrumentale. La seule variation entre ces deux instruments réside dans l’utilisation de la raie à 184 keV de l’erbium avant collage, puis celle à 182 keV du gadolinium.

Ces énergies, beaucoup plus basses que celles utilisées à l’ESRF, permet d’expliquer les mosaïcités plus élevées des cristaux de cuivre que celles indiquées au sein de la Figure 5.2. Quant aux cristaux de SiGe, non mosaïque, ils ne sont pas soumis à l’extinction secondaire (§2.3) et ne subissent donc pas cet élargissement.

Les cristaux de cuivre de 3 mm d’épaisseur, les plus fragiles, ont subi en moyenne un élargissement de leur mosaïcité de  $10 \pm 6$  arcsec après leur collage (Figure 5.12). Le cas des trois cristaux de cuivre de 9 mm, pourtant moins sensibles, est plus difficile à expliquer avec des élargissements de 5, 15 et 26 arcsec. Cette forte disparité pourrait ainsi provenir d’une dégradation accidentelle, comme un choc, plus que d’une déformation liée au collage.

Les cristaux de SiGe, avec leur épaisseur de 23 mm et leur plus grande dureté, n’ont subi aucune déformation visible après leur fixation sur le module.

### 5.5.4 Contrôle après vibration

**Orientation** Des essais vibration ont été réalisés par Thales Alenia Space afin de valider la bonne tenue aux vibrations du module et plus particulièrement des collages. Les cristaux ont subi des accélérations sinusoïdales atteignant 75g, sans

| Nom des cristaux    | Epaisseur (mm) | FWHM (arcsec) avant collage | FWHM (arcsec) après collage |
|---------------------|----------------|-----------------------------|-----------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | 3              | $49 \pm 2$                  | $63 \pm 7$                  |
| Cu $\delta$ 4.2     | 3              | $51 \pm 4$                  | $60 \pm 6$                  |
| Cu $\delta$ 4.3     | 3              | $49 \pm 2$                  | $57 \pm 1$                  |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | 9              | $40 \pm 7$                  | $45 \pm 2$                  |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | 9              | $30 \pm 2$                  | $56 \pm 1$                  |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | 9              | $25 \pm 4$                  | $40 \pm 7$                  |
| SiGe 368.1a         | 23             | $26 \pm 2$                  | $28 \pm 1$                  |
| SiGe 368.1b         | 23             | $30 \pm 1$                  | $30 \pm 1$                  |
| SiGe 368.2          | 23             | $33 \pm 6$                  | $34 \pm 1$                  |
| SiGe 359.1          | 23             | $26 \pm 1$                  | $26 \pm 1$                  |

TABLE 5.5 – Mesure de la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction, avant et après collage. Les mesures avant collage ont été obtenues sur GAMS-4 avec un faisceau de 184 keV, tandis que celles après collage proviennent de GAMS-5 et un faisceau de 182 keV.

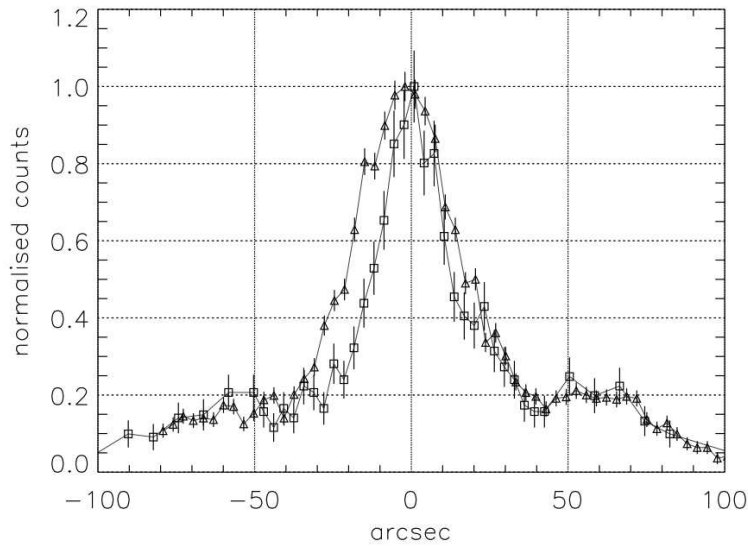


FIGURE 5.12 – Pics de diffraction du cristal Cu 834  $\delta$ 3.3 de 3 mm d'épaisseur, avant (carrés) et après collage (triangles). Leur largeur à mi-hauteur est respectivement de 25 et 40 arcsec. Les mesures avant collage ont été obtenues sur GAMS-4 avec un faisceau de 184 keV, tandis que celles après collage proviennent de GAMS-5 et un faisceau de 182 keV.

## 5.5. CONTRÔLE DU MODULE - ORIENTATION ET MOSAÏCITÉ

| Nom des cristaux    | Désorientation après vibrations (arcsec) |
|---------------------|--|
| Cu $\delta$ 4.1     | $-13,7 \pm 7$                            |
| Cu $\delta$ 4.2     | $-36,3 \pm 7$                            |
| Cu $\delta$ 4.3     | $-3,3 \pm 7$                             |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | $-4,6 \pm 7$                             |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | $-3,7 \pm 7$                             |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | $3,2 \pm 7$                              |
| SiGe 368.1a         | $4,1 \pm 7$                              |
| SiGe 368.1b         | $2,7 \pm 7$                              |
| SiGe 368.2          | $7,3 \pm 7$                              |
| SiGe 359.1          | $14,1 \pm 7$                             |

TABLE 5.6 – Mesure de la désorientation des plans diffractant induite par les essais vibration. Les mesures ont été effectuées sur GAMS-5 à l’aide d’un faisceau de 182 keV et un monochromateur de Si(220).

décollement.

Un contrôle sur GAMS-5 a alors permis de mesurer le désalignement des cristaux (Tableau 5.6), ainsi que la dégradation de leur qualité cristalline (Tableau 5.7), induite par les vibrations.

Un désalignement de 36 arcsec sort particulièrement du lot, il correspond au tout premier cristal fixé sur le module. D’après ces résultats de mesure, aucune corrélation n’existe entre les désorientations après vibrations et la nature ou l’épaisseur des cristaux.

Toutefois, mise à part la valeur à 36 arcsec, trois valeurs élevées, respectivement de 14, 7 et 14 arcsec, se détachent des autres. Ces valeurs correspondent aux cristaux situés en bordure du module, proches d’un des trois points de fixation. Il est ainsi possible que ces cristaux aient subi des contraintes supérieures à leurs voisins.

Les autres valeurs restent inférieures à 5 arcsec avec une moyenne de 3,3 arcsec.

**Mosaïcité** Le Tableau 5.7 présente les largeurs à mi-hauteur des cristaux du module, avant et après collage, ainsi que celles après essais vibrations.

Tout comme le collage, les vibrations n’ont pas affecté la qualité cristalline des SiGe. Les cristaux de cuivre quant à eux ne semblent pas avoir évolués de façon notable, à l’exception du Cu $\delta$ 4.2, le premier cristal fixé sur le module.

### 5.5.5 Contrôle après cyclage thermique

Après les tests de vibrations, le module a également subi un gradient thermique compris entre 0 et 40°C, au sein des locaux de Thales Alenia Space. Comme précédemment, l’objectif était de mesurer l’impact d’un cyclage thermique sur l’orientation des cristaux et leur qualité cristalline.

## CHAPITRE 5. DÉVELOPPEMENT D'UN PROTOTYPE DE LENTILLE DE LAUE

| Nom des cristaux    | Epaisseur (mm) | FWHM (arcsec) avant collage | FWHM (arcsec) après collage | FWHM (arcsec) après vibrations |
|---------------------|----------------|-----------------------------|-----------------------------|--------------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | 3              | $49 \pm 2$                  | $63 \pm 7$                  | $51 \pm 3$                     |
| Cu $\delta$ 4.2     | 3              | $51 \pm 4$                  | $60 \pm 6$                  | $88 \pm 6$                     |
| Cu $\delta$ 4.3     | 3              | $49 \pm 2$                  | $57 \pm 3$                  | $57 \pm 5$                     |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | 9              | $40 \pm 7$                  | $45 \pm 2$                  | $48 \pm 7$                     |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | 9              | $30 \pm 2$                  | $56 \pm 5$                  | $45 \pm 3$                     |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | 9              | $25 \pm 4$                  | $40 \pm 7$                  | $48 \pm 7$                     |
| SiGe 368.1a         | 23             | $26 \pm 2$                  | $28 \pm 1$                  | $27 \pm 2$                     |
| SiGe 368.1b         | 23             | $30 \pm 1$                  | $30 \pm 1$                  | $28 \pm 1$                     |
| SiGe 368.2          | 23             | $33 \pm 6$                  | $34 \pm 1$                  | $37 \pm 1$                     |
| SiGe 359.1          | 23             | $26 \pm 1$                  | $26 \pm 1$                  | $26 \pm 1$                     |

TABLE 5.7 – Mesure de la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction, avant et après collage puis après les essais vibration. Les mesures après vibrations proviennent de GAMS-5 et un faisceau de 182 keV.

**Orientation** Les incertitudes de mesure, estimées à 7 arcsec, nous empêchent d'avoir une vision précise du désalignement des cristaux (Tableau 5.8). Néanmoins là encore, le premier cristal fixé sur le module (Cu  $\delta$ 4.2) présente la plus forte désorientation ( $25 \pm 7 \text{ arcsec}$ ). En excluant cette valeur, les neuf autres cristaux se sont désorientés de  $9,5 \pm 7 \text{ arcsec}$  en moyenne avec une déviation standard de 5,5 arcsec. De plus, aucune corrélation avec le matériau ou l'épaisseur des cristaux n'est visible.

**Mosaïcité** En ce qui concerne les cristaux de SiGe, ceux-ci n'ont pas été affectés par le cyclage thermique et conservent leur très bonnes qualités cristallines (Tableau 5.9). Dans le cas des cristaux de cuivre, l'incertitude de mesure nous empêche de distinguer des variations significatives.

## 5.6 Conclusion

Grâce à la réalisation d'un module prototype de lentille de Laue, nous avons validé la faisabilité technique de l'orientation des cristaux sur leur support.

Nous avons ainsi mis en lumière un problème de stabilité du collage durant la polymérisation, lequel pourra être minimisé par une nouvelle géométrie des plots de fixation.

Le contrôle de l'orientation des plans diffractant s'est également révélé plus complexes que prévu, nécessitant de refaire plusieurs fois les mesures avec finalement une incertitude proche de 10 arcsec.

Malgré ces difficultés, les cristaux de SiGe ont été fixés et orientés avec une précision meilleure que  $18 \pm 6$  arcsec. Leur épaisseur de 23 mm et leur dureté ont permis au réseau cristallin de résister au collage, aux vibrations et au gradient thermique.

| Nom des cristaux    | Désorientation après cyclage thermique (arcsec) |
|---------------------|---|
| Cu $\delta$ 4.1     | $15,4 \pm 7$                                    |
| Cu $\delta$ 4.2     | $25.3 \pm 7$                                    |
| Cu $\delta$ 4.3     | $1.9 \pm 7$                                     |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | $10.8 \pm 7$                                    |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | $16.9 \pm 7$                                    |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | $-3.4 \pm 7$                                    |
| SiGe 368.1a         | $-11.1 \pm 7$                                   |
| SiGe 368.1b         | $-5.6 \pm 7$                                    |
| SiGe 368.2          | $6.1 \pm 7$                                     |
| SiGe 359.1          | $14.6 \pm 7$                                    |

TABLE 5.8 – Mesure de la désorientation des plans diffractant induite par le cyclage thermique. Les mesures ont été effectuées sur GAMS-5 à l’aide d’un faisceau de 182 keV et un monochromateur de Si(220).

| Nom des cristaux    | Epaisseur (mm) | FWHM (arcsec) après thermique |
|---------------------|----------------|-------------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | 3              | $62 \pm 5$                    |
| Cu $\delta$ 4.2     | 3              | $75 \pm 6$                    |
| Cu $\delta$ 4.3     | 3              | $56 \pm 4$                    |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | 9              | $60 \pm 4$                    |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | 9              | $40 \pm 4$                    |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | 9              | $42 \pm 4$                    |
| SiGe 368.1a         | 23             | $29 \pm 1$                    |
| SiGe 368.1b         | 23             | $29 \pm 2$                    |
| SiGe 368.2          | 23             | $36 \pm 2$                    |
| SiGe 359.1          | 23             | $26 \pm 2$                    |

TABLE 5.9 – Mesure de la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction, après le cyclage thermique. Les mesures proviennent de GAMS-5 avec un faisceau gamma de 182 keV.



## CHAPITRE 5. DÉVELOPPEMENT D'UN PROTOTYPE DE LENTILLE DE LAUE

| Nom des cristaux    | $\Psi$ Mesurée (arcsec) | $\Psi$ Demandée (arcsec) | $\Delta_{M-D}$ (arcsec) |
|---------------------|-------------------------|--------------------------|-------------------------|
| Cu $\delta$ 4.1     | $2448 \pm 6$            | $2417 \pm 1$             | $31 \pm 7$              |
| Cu $\delta$ 4.2     | $5414 \pm 7$            | $5378 \pm 3$             | $36 \pm 8$              |
| Cu $\delta$ 4.3     | $1967 \pm 6$            | $1934 \pm 1$             | $33 \pm 6$              |
| Cu 834 $\delta$ 3.1 | $1147 \pm 6$            | $1100 \pm 1$             | $47 \pm 6$              |
| Cu 834 $\delta$ 3.2 | $990 \pm 7$             | $958 \pm 2$              | $32 \pm 7$              |
| Cu 834 $\delta$ 3.3 | $1063 \pm 6$            | $1016 \pm 2$             | $47 \pm 6$              |
| SiGe 368.1a         | $17 \pm 6$              | $16 \pm 1$               | $1 \pm 6$               |
| SiGe 368.1b         | $20 \pm 6$              | $17 \pm 1$               | $3 \pm 6$               |
| SiGe 368.2          | $500 \pm 6$             | $481 \pm 1$              | $19 \pm 6$              |
| SiGe 359.1          | $-2916 \pm 7$           | $-2931 \pm 1$            | $15 \pm 7$              |

TABLE 5.10 – Tableau de synthèse des mesures d'orientations des plans diffractant après leur fixation, les tests de vibrations et thermiques. Les mesures sont comparées aux valeurs initialement demandées ( $\Delta_{M-D}$ ).

L'orientation des cristaux de cuivre est plus aléatoire avec des précisions d'orientation variant de  $33 \pm 8$  pour les cristaux de 3 mm, à  $42 \pm 7$  arcsec pour ceux de 9 mm. Contrairement au cristaux de SiGe, les vibrations et le gradient thermique ont eu un impact visible sur l'orientation de certains cristaux de cuivre, mais sans aucune corrélation avec leur épaisseur.

**Perspectives** A l'aide du prototype de lentille, nous avons démontré qu'il était techniquement possible de fixer des cristaux sans dégradation et avec une précision allant de 1 à 47 arcsec. Toutefois, la technique utilisée "hors faisceau" paraît trop complexe, et trop longue à mettre en oeuvre, pour être employée à grande échelle sur une lentille complète.

Une étude est actuellement en cours afin de développer une technique d'alignement dite "dans le faisceau", permettant d'accélérer le processus de fixation et d'alignement des cristaux. L'objectif sera de réduire le nombre de manipulations en orientant et en fixant les cristaux sur le module, directement dans le faisceau X.

Cette technique, proche de celle employée sur la lentille CLAIRE (cf. §1.5.2)(von Ballmoos et al, 2005) nécessitera un outillage adapté, permettant d'automatiser le réglage d'orientation des cristaux, ainsi qu'un faisceau X disponible durant toute la durée de leur fixation.

## Capacité en imagerie de la lentille de Laue

Le chapitre qui suit traite des capacités en imagerie de la lentille de Laue, dans le cas de sources monochromatiques ponctuelles et étendues. Ainsi, des observations de sources ponctuelles à 511 keV et étendues à 2223 keV ont été simulées pour obtenir les limites de l'instrument en fonction de son design, avec la sensibilité, le champ de vue et la résolution angulaire.

Les diverses limitations de la lentille de Laue sont mises en avant avec la rapide dégradation de la surface efficace avec le dépointage de la source, la taille importante de la tache focale et la grande taille du plan de détection nécessaire pour les longues focales. Malgré cela, on montre qu'il serait possible d'obtenir une résolution angulaire de 40 arcsec à 511 keV avec l'utilisation d'une focale de 100 m. Il serait également possible d'imager une source étendue à 2223 keV, émettant  $10^{-1} ph/cm^2/s$  durant  $10^3 s$ , avec une résolution angulaire de 70 arcsec et un champ de vue d'environ 10 arcmin.

# Laue lens imaging capabilities

Rousselle J.,<sup>1,2,\*</sup> and von Ballmoos P.,<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>University of Toulouse ; UPS ; CESR ; 9 ave colonel Roche, F-31028 Toulouse cedex 9, France

<sup>2</sup>CNRS ; UMR5187 ; F-31028 Toulouse, France

\* Corresponding author: julien.rousselle@cesr.fr

Compiled February 15, 2011

The Laue lens is an instrumental concept for nuclear astrophysics, concentrating X / gamma rays from a large collection area into a small detection plane in order to provide high sensitivity detection between 200 and 2300 keV. The lens is made of a large number of crystals, disposed on concentric rings such as they diffract via Bragg-diffraction the incident gamma-rays onto a common focal spot. The purpose of this paper is to describe the laue lens capabilities to image monochromatic sources in the both cases of point sources at 511 keV and extended source at 2223 keV. The characteristic strengths and weaknesses of this type of imaging are finally summarized, with angular resolution and field of view reaching 40 arcsec and 10 arcmin respectively. © 2011 Optical Society of America

OCIS codes:

## 1. Introduction

The Laue lens is an instrumental concept for nuclear astrophysics, concentrating X-gamma rays from a large collection area into a small detection plane in order to provide high sensitivity detection between 200 and 2300 keV. The lens is made of a large number of crystals, disposed on concentric rings such as they diffract via Bragg-diffraction the incident gamma-rays onto a common focal spot.

Prior papers have widely treated the Laue lens diffracting principles [1] [2] and its performance in terms of effective area and sensitivity [3] [4]. Thereby, the object of this paper is to deepen our knowledge about the Laue lens imaging performance, focusing on the strengths and weaknesses inherent to its principle and trying to limit the influence of the focal plane.

In order to illustrate these capabilities, two different examples were simulated. Firstly, the 511 keV annihilation line produced by a point source and observed with Laue lenses using a short (25 m) and long (100 m) focal lengths. The simulation main objective was to measure the instrument aptitude to separate two point sources as well as its field of view.

In the second part, we simulated the 2223 keV line of the neutron capture on hydrogen produced by a solar flare, in order to measure the lens capability to find an extended source within a large field of view, without any information on the source position or flux.

In both cases, the study leans on cross correlation and maximum likelihood analysis and on monochromatic source observations, whose instrumental response more compact is more favorable for imaging.

## 2. Point sources at 511 keV

### A. Lens designs

Two lenses were designed to observe the 511 keV line. One made of silver crystals with a 100 m focal length

(Tab. 1), reaching an effective area of 650 cm<sup>2</sup> (Fig. 1) and a second one made of silver and copper crystals with a focal length of 25 m only (Fig. 2) and reaching an effective area of 350 cm<sup>2</sup> (Fig. 1).

The collection area, which depends to the crystal ring radius  $r$ , is linked to the focal length  $F$  by  $r = \tan(\theta)F$  with  $\theta$  the Bragg angle. Thus the shorter 25 m focal length involves a smaller collection area which can be partly compensated adding more diffracting materials (Tab. 2). Silver crystals were used as the lens main components because of prior studies on diffracting materials, showing this element as the best candidate to diffract between 400 and 600 keV [5].

Table 1. Laue lens designed to observe the 511 keV line with a 100 m focal length.

|                   |                       |       |
|-------------------|-----------------------|-------|
| Focal length      | 100 m                 |       |
| Crystal size      | 15x15 mm <sup>2</sup> |       |
| Mosaic spread     | 30 arcsec             |       |
| Elements          | Ag                    |       |
| Planes (hkl)      | (111)                 | (200) |
| Radius (cm)       | 103                   | 119   |
| Crystal number    | 424                   | 490   |
| Crystal mass (kg) | 3.25                  | 4.22  |

Table 2. Laue lens designed to observe the 511 keV annihilation line with a 25 m focal length.

|                   |                       |       |       |       |
|-------------------|-----------------------|-------|-------|-------|
| Focal length      | 25 m                  |       |       |       |
| Crystal size      | 15x15 mm <sup>2</sup> |       |       |       |
| Mosaic spread     | 30 arcsec             |       |       |       |
| Elements          | Ag                    |       |       | Cu    |
| Planes (hkl)      | (111)                 | (200) | (220) | (200) |
| Radius (cm)       | 26                    | 30    | 42    | 34    |
| Crystal number    | 103                   | 120   | 171   | 136   |
| Crystal mass (kg) | 0.8                   | 1.0   | 2.0   | 1.6   |

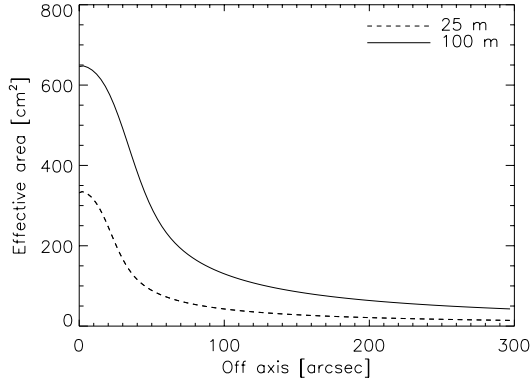


Fig. 1. The effective area as a function of off-axis angle for the lenses described in Tables 1 (100 m focal length) and 2 (25 m focal length).

### B. Detector model

The detector part of the imaging simulation was made of a germanium detector of 6 cm thickness and with a sufficient spatial resolution (pixel of  $1 \text{ mm}^2$ ) so that it does not mask the lens imaging performance. The simulated background level was based on the SPI germanium detector on board of INTEGRAL [6], taking into account the anti-coincidence shield. Whereas the SPI detection efficiency at 511 keV, 30% was also specified in the detector model. The resulting background count rate is  $1.3 \cdot 10^{-4} \text{ cts/cm}^2/\text{s}$ , uniformly distributed on the detection plane with a Poisson statistic.

Observing a monochromatic point source, the lens concentrates the incoming flux into a focal spot of the size of a crystal footprint ( $15 \times 15 \text{ mm}$ ), whatever the focal length (Fig. 3). Therefore a large focal length authorizes a better separation of the sources and thus a better angular resolution, but increases the detector size for a given field of view (Fig. 3).

In our cases, to observe a point source placed 5 arcmin off-axis, the instrument needs at least a detector size of 300 and 90 mm respectively for focal lengths of 100 and 25 m. Thus in the case of a monochromatic source, the angular resolution is mainly limited by the ratio focal length over crystal size.

### C. Imaging capabilities

**Lens sensitivity estimation** Using the SPI background noise, the detection plane shown above and  $10^6 \text{ s}$  exposition time, we calculated the  $3\sigma$  line sensitivity as a function of the off-axis angle (Fig. 2). Thus we estimated the  $3\sigma$  line sensitivity to  $1.5 \cdot 10^{-6}$  and  $2.7 \cdot 10^{-6} \text{ ph/cm}^2/\text{s}$  respectively for an on-axis source observed with the 100 m and 25 m focal lengths.

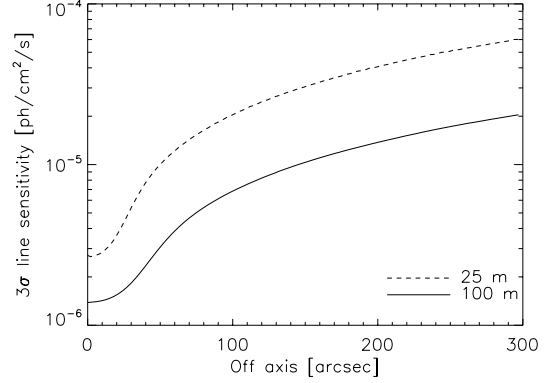


Fig. 2. The  $3\sigma$  line sensitivity as a function of off-axis angle, calculated for  $10^6 \text{ s}$  exposition time and the detection plane described above. Each curve represents a lens design described in Tables 1 (100 m focal length) and 2 (25 m focal length).

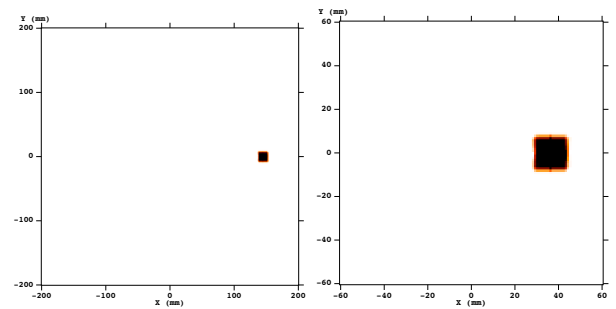


Fig. 3. The point spread functions (psf) of the lenses described Tables 1 (left, 100 m focal length) and 2 (right, 25 m focal length) and 300 arcsec off-axis. The focal planes measure respectively  $40 \times 40 \text{ cm}^2$  and  $12 \times 12 \text{ cm}^2$ .

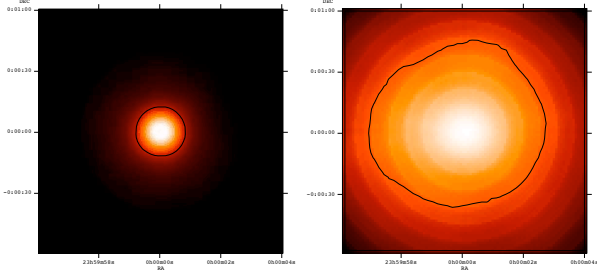


Fig. 4. Reconstructed sky map of 2x2 arcmin and half power diameter (HPD) of on-axis point source emitting  $10^{-4} ph/cm^2/s$ . Left; Case of 100 m focal length with HPD measuring 24 arcsec. Right; Case of 25 m focal length with HPD measuring 80 arcsec.

**Focal length of 100m** We assume a point source emitting a 511 keV annihilation line with a 2 keV width [7] and a flux of  $10^{-4} ph/cm^2/s$ . The source is observe with only one pointing (centered on the sky map origin) during  $10^6 s$ , by the lens described in Table 1 with a 100 m focal length.

In order to reconstruct a flux map of the source, a model (d) is adjusted on the simulated rough data, made of the convolution of the source with the lens response and an uniform Poisson distributed background noise. This model is made of the somme of the lens response (r) and a background model (b) ;  $d = p1 * r + p2 * b$  with  $p1$  and  $p2$  respectively the fitted signal flux and background rate.

The reconstructed flux map of a single on-axis point source is shown Figure 4 (left). The half power diameter (HPD in black curve) contains 50% of the adjusted flux within a region of 24 arcsec.

In order to measure the lens capability to separate two point sources, we simulated the both sources with different angular distances, each one emitting  $10^{-4} ph/cm^2/s$ . The profiles of the fitted flux map, through the both sources are shown figures 5 and 7 respectively for the focal lengths of 100 and 25 meters.

If we define the resolution power as the angular distance where the two sources are separated at most by the half maximum flux, we can estimate the lens resolution about 40 arcsec (Fig. 5). In this case, one find that the treatment algorithm is able to adjust the source flux to  $1.01 \cdot 10^{-4} \pm 1.3 \cdot 10^{-6} ph/cm^2/s$ . However, the measured resolution also depends on the deconvolution model and could be improved with a more complex algorithm as the Iterative Removal of Source (IROS).

The lens field of view (FOV) could be defined as the off-axis angle corresponding to the loss of 50% of effective area. In this case the lens FOV should be limited to 2 arcmin (1). Nevertheless, as shown figure 6 a point source placed 5 arcmin off-axis could be detected using a maximum likelihood analysis, with a detection significance level of  $24 \sigma$  and localized within a region of 10 arcsec. Thereby, using a focal length of 100m, the lens

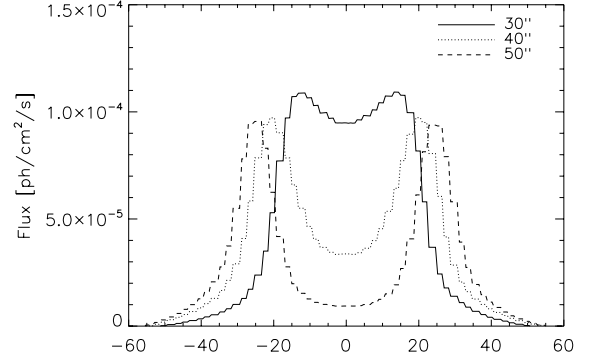


Fig. 5. The reconstructed sky map profiles, through the both 511 keV point sources for a 100 m focal length and three different angular distances; 30, 40, 50 arcsec.

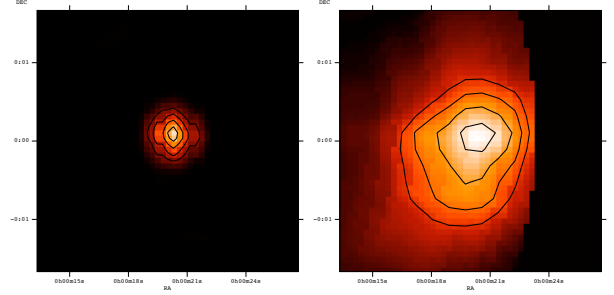


Fig. 6. The maximum likelihood sky maps of 200x200 arcsec for 300 arcsec off-axis. Left; 100 m focal length with 12, 16, 20 and 24 sigma detection significance. Right; 25 m focal length with 6, 7, 8 and 9 sigma detection significance.

FOV is more limited by the detector size reaching  $30 \times 30 cm^2$  than by the decrease of lens effective area.

**Focal length of 25 m** As discussed above, from imaging point of view, a shorter focal length allows to use a more compact detector plane for a given field of view (Fig. 3) but damage the angular resolution. The Figure 7 presents the reconstructed sky map profiles for angular distances from 70 to 90 arcsec to study the lens capability to resolve two point sources with a short focal length of 25 m.

The profiles shows that the both simulated sources are separated, but the fitted flux don't reach the input value of  $10^{-4} ph/cm^2/s$  before an angular distance of 80 arcsec with a adjusted flux of  $1.1 \cdot 10^{-4} \pm 10^{-5} ph/cm^2/s$ . Moreover, the reconstructed flux map of an on-axis point source is much broader than for the 100 m focal length, with a half power diameter (HPD) reaching 80 arcsec (Fig. 4 right).

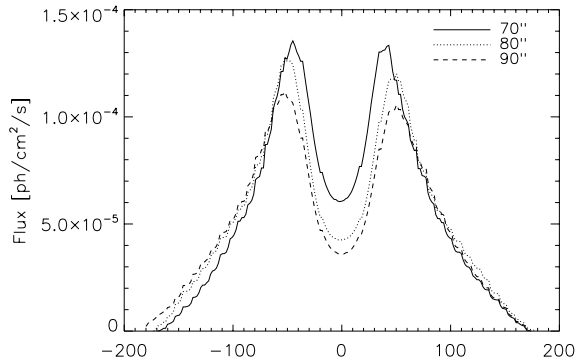


Fig. 7. The reconstructed sky map profiles, through the both 511 keV point sources for a 25 m focal length and three different angular distances; 70, 80, 90 arcsec.

Despite the lower effective area, the Figure 6 (Right) shows that a point source placed 5 arcmin off-axis could be detected with a significance level of  $9\sigma$  and localized within a region of 40 arcsec, for a detector size of  $9 \times 9 \text{ cm}^2$ .

### 3. Extended source at 2223 keV

#### A. Lens design

This section introduces a Laue lens designed to observe the 2223 keV line, from neutron capture on hydrogen, in sun flares and its capabilities to image extended sources.

Table 3 presents the lens design which uses gold and copper crystals between ring radius of 22 and 31 cm for a 100 m focal length.

Table 3. Laue lens designed to observe the 2223 keV line.

|                |                             |       |        |       |
|----------------|-----------------------------|-------|--------|-------|
| Focal length   | 100 m                       |       |        |       |
| Crystal size   | $15 \times 15 \text{ mm}^2$ |       |        |       |
| Mosaic spread  | 30 arcsec                   |       |        |       |
| Elements       | Au                          |       | Cu     |       |
| Planes (hkl)   | (111)                       | (200) | (111)  | (200) |
| Radius (cm)    | 22-24                       | 27-28 | 25     | 30-31 |
| Crystal number | 187                         | 224   | 103    | 250   |
| Crystal mass   | 6 kg                        | 8 kg  | 4.5 kg | 11 kg |

The lens effective area as a function of the off-axis angle is shown Figure 8 for different crystal mosaicities, or crystal angular spread [8]. The main idea was to enlarge the lens field of view using mosaicities broader than 30 arcsec. But the small benefit after 40 arcsec disappears at 300 arcsec and can't compensate the loss for an on-axis source.

In the case of the lens design which uses a 30 arcsec mosaicity, the effective area varies from  $150 \text{ cm}^2$  on-axis

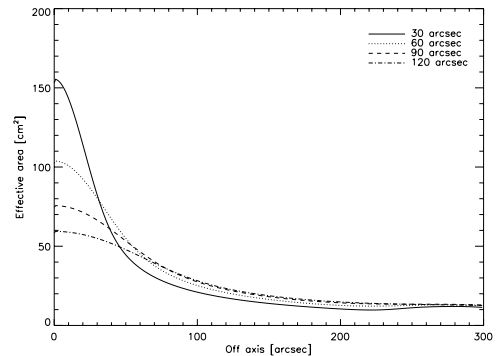


Fig. 8. Effective area as function of the off-axis angle for different mosaicities and a perfectly oriented lens.

to  $10 \text{ cm}^2$  for 5 arcmin off-axis.

#### B. Simulation parameters

**Detector model** We assume a segmented germanium detector with thickness of 6 cm, a detection efficiency of 20% at 2223 keV and made of pixels of  $1 \text{ cm}^2$ . The background noise is extracted from the instrument SPI onboard of INTEGRAL [6]. It results a uniformly distributed count rate of  $10^{-5} \text{ cts/cm}^2/\text{s}$  in the line, with a Poisson statistic. Due to the 100 m focal length, the detector needs to be larger than  $300 \times 300 \text{ mm}$  (Fig. 10) to image 10 arcmin field of view.

#### C. Imaging performance

**Lens sensitivity estimation** Figure 9 shows the 3 $\sigma$  line sensitivity at 2223 keV, estimated for  $10^3 \text{ s}$  exposition time and the background rate described above ( $10^{-5} \text{ cts/cm}^2/\text{s}$ ). As the effective area, the lens sensitivity was calculated as a function of off-axis angle and for several mosaicities to study its impact on the lens field of view. The results tend towards crystals with low angular spread of 30 arcsec due to the negligible gain for broader mosaicities in the 40-100 arcsec off-axis range and the degradation for on-axis source.

In the next sections, only the lens design which uses a mosaicity of 30 arcsec will be treated. In this case the lens sensitivity varies from  $2 \cdot 10^{-4} \text{ ph/cm}^2/\text{s}$  on-axis to  $10^{-2} \text{ ph/cm}^2/\text{s}$  for an off-axis angle reaching 5 arcmin.

**Angular resolution** We estimated the lens angular resolution calculating the half power diameter (HPD) of the reconstructed sky map for an on-axis point source emitting  $10^{-1} \text{ ph/cm}^2/\text{s}$  (Fig. 10 right). This diameter, containing 50% of the adjusted signal flux, measures 50 arcsec. We also estimated the lens capability to separate two point sources, each one emitting  $10^{-1} \text{ ph/cm}^2/\text{s}$  (Fig. 11). For an angular distance of 70 arcsec the both sources are separated by the half maximum level and

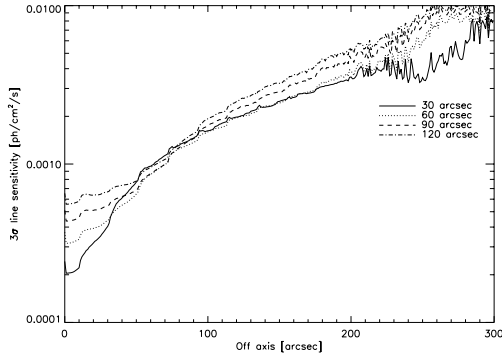


Fig. 9.  $3\sigma$  line sensitivity for  $10^3s$  exposition time and different mosaicities; 30, 60, 90, 120 arcsec.

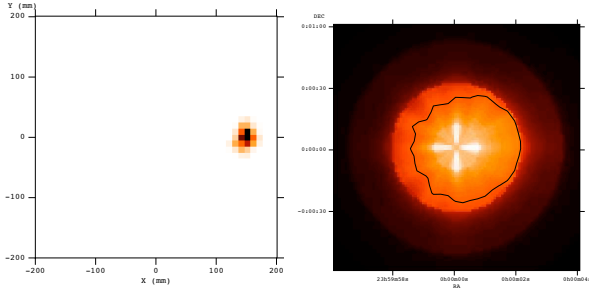


Fig. 10. Left; Point spread function for 300 arcsec off-axis of the lens described in Table 3 designed to observe the 2223 keV line. Right; The reconstructed sky map ( $2 \times 2$  arcmin) for on-axis point source emitting  $10^{-1} ph/cm^2/s$ . The half power diameter (black curve) is about 50 arcsec.

their flux are adjusted with a point source model to  $0.11 \pm 4 \cdot 10^{-3} ph/cm^2/s$ .

**Solar flares simulation** The black ellipse in Figure 13 presents the 2D gaussian with standard deviations of 1 and 2 arcmin, which was generated to simulate the extended source. According to R. P. Lin (2002) [9], the expected intrinsic width of the solar 2223 keV line should be thinner than 0.1 keV. Therefore we assume an observed line width only defined by the detector energy resolution of SPI, 3 keV at 2223 keV [10]. We simulated an integrated source emission of  $10^{-1} ph/cm^2/s$  [11], observed with only one pointing (centered on the sky map origin) during  $10^3s$ .

After convolution these observation parameters leads to the rough detector data, which are analyzed firstly with a simple cross-correlation algorithm (12). In these maps the black ellipse represents the half maximum contour of the source, centered at three different off-axis; 0, 180 and 300 arcsec. This imaging analysis shows a correlation maximum of 0.9, 0.7 and 0.5 respectively for an off axis of 0, 180 and 300 arcsec. Due to the low counting

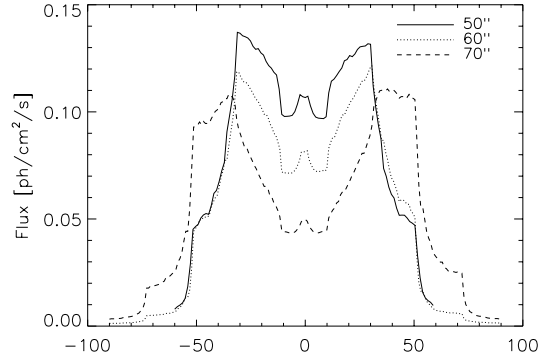


Fig. 11. The reconstructed sky map profiles of two point sources at 511 keV, separated by 50, 60 and 70 arcsec.

rate at 300 arcsec ( $\sim 150$  counts, Table 4) the statistical fluctuations are clearly visible and limit the lens field of view.

Figure 13 presents the reconstructed sky map of the extended source for three different off-axis (0, 180 and 300 arcsec). The source flux is fitted on the rough data using a model describe by;

$$d = p1 \cdot r \frac{2 \tan^{-1} \left( \frac{x}{2F} \right)}{\beta} + p2 \cdot b, \quad (1)$$

with  $p1$  and  $p2$  the adjusted source flux and background rate,  $r$  and  $b$  the lens response and background model (product of acquisition time and pixel area). A correction factor is added to take into account the source extension with the ratio of the lens response field of view, depending to the response size on the detector ( $x$ ) and the focal length ( $F$ ), over the reconstructed sky map resolution ( $\beta$ ).

Table 4. Results of the adjusted parameters for the extended sources.  $\delta$  is the source off-axis,  $\Sigma c$  the total counting on the detection plane,  $p1$  and  $p2$  the fitted source flux and background rate.

| $\delta$<br>(arcsec) | $\Sigma c$  | $p1$<br>( $ph/cm^2/s$ ) | $p2$<br>( $cts/cm^2/s$ )              |
|----------------------|-------------|-------------------------|---------------------------------------|
| 0                    | $\sim 1250$ | $0.099 \pm 0.020$       | $5 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-5}$ |
| 180                  | $\sim 300$  | $0.090 \pm 0.030$       | $6 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-5}$ |
| 300                  | $\sim 150$  | $0.060 \pm 0.030$       | $9 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-5}$ |

As the cross correlation analysis the source is clearly visible for off-axis up to 300 arcsec with in this case the statistical fluctuations due to the low counting rate ( $\sim 150$ ). This low count rate could also explain the results of the adjusted model, less efficient in the last case. The model, whose results are visible in Table 4, is capable to find the input extended source flux but can not correctly

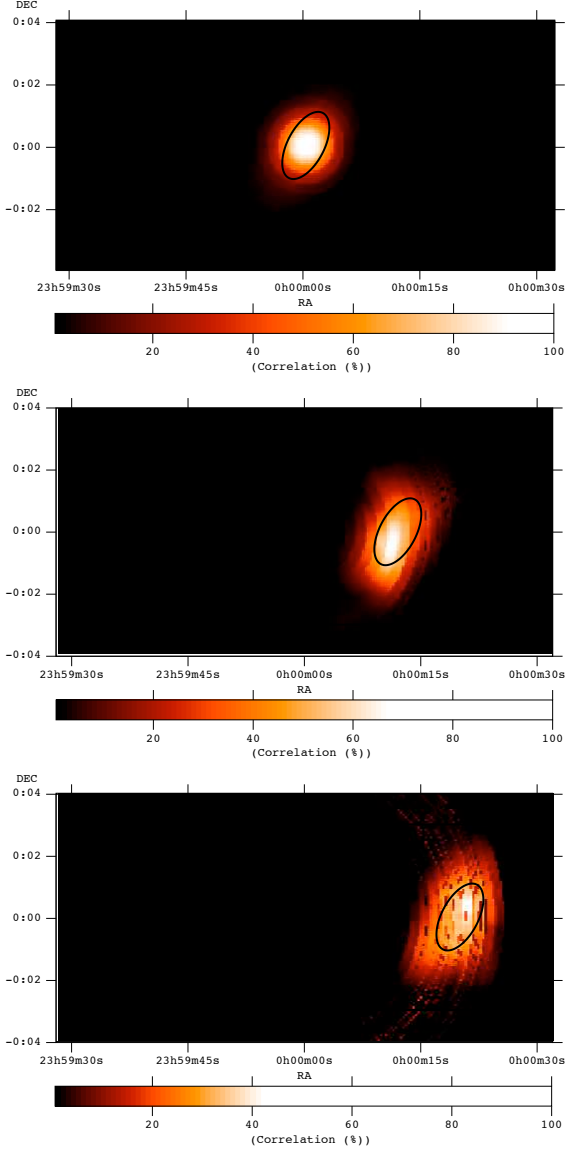


Fig. 12. Data-lens response cross correlation sky map (16x8 arcmin) for an extended source and three off axis; 0, 180 and 300 arcsec. The black ellipse represents the 2D gaussian FWHM of the source, which emits a integrated flux of  $10^1 \text{ ph/cm}^2/\text{s}$ . The source is observed during  $10^3 \text{ s}$  with only one pointing centered on the sky map origin.

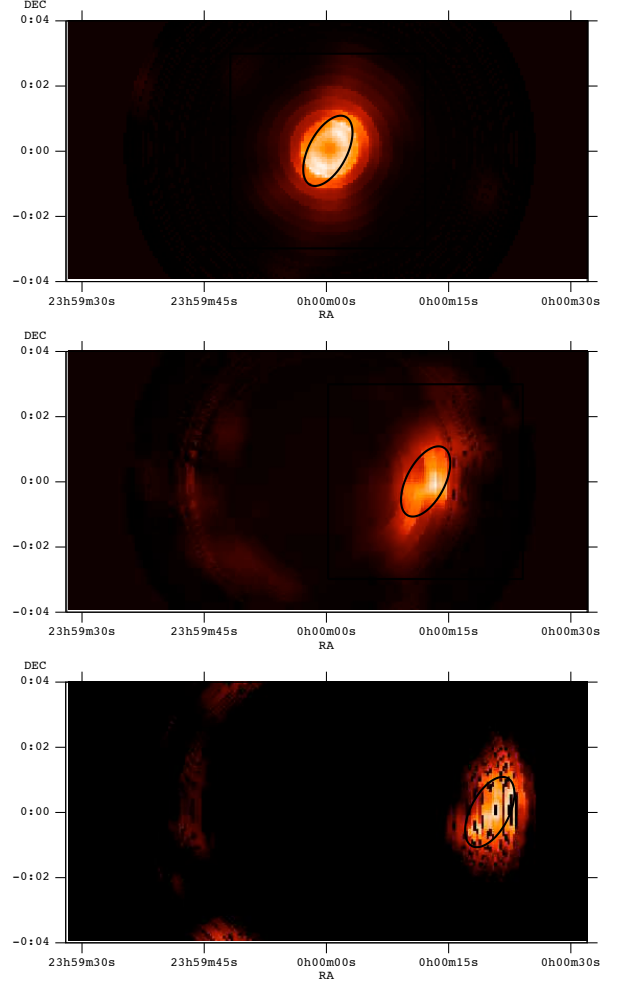


Fig. 13. The reconstructed source flux sky map (18x8 arcmin) for three different off-axis, 0, 180 and 300 arcsec. The black ellipse represents the 2D gaussian FWHM of the source, which emits a integrated flux of  $10^1 \text{ ph/cm}^2/\text{s}$ . The source is observed during  $10^3 \text{ s}$  with only one pointing centered on the sky map origin. The total reconstructed flux are respectively, 0.099, 0.090 and  $0.060 \text{ ph/cm}^2/\text{s}$ .



adjust the background rate.

## Conclusion

In the case of a monochromatic source observed with a Laue lens, the size of the point spread function doesn't vary with the focal length. So the long focal length of 100 m allows a better source separation on the detection plane and a better angular resolution, reaching 40 at 511 keV. However with the 100 m focal length, the source separation becomes so wide that the field of view (FOV) is no more limited by the lens effective area but the detection plane size, which reach  $30 \times 30 \text{ cm}^2$  for a FOV of 10 arcmin. A shorter focal length of 25 m could be able to reach the same FOV with a detection plane of  $9 \times 9 \text{ cm}^2$ , but is subject to a degradation of the angular resolution by a factor of two.

At 2223 keV, the simulated source is located at the energy range boundary usable by Laue lens. The low crystal ring radiuses tend to reduce the effective area, and is only partly compensated by the addition of diffracting materials. Thus the lower effective area obliges to use larger detector plane pixels of  $10 \times 10 \text{ mm}^2$ , that implies a broader point spread function. In spite of these limitations, a Laue lens could be able to detect and image, with a 70 arcsec angular resolution, an extended source emitting  $10^{-1} \text{ ph/cm}^2/\text{s}$  during  $10^3 \text{ s}$  in a 10 arcmin field of view.

## References

1. H. Halloin and P. Bastie, "Laue diffraction lenses for astrophysics: Theoretical concepts," *Experimental Astronomy* **20**, 151–170 (2005).
2. D. Pellicciotta, F. Frontera, G. Loffredo, A. Pisa, K. Andersen, P. Courtois, B. Hamelin, V. Carassiti, M. Melchiorri, S. Squerzanti, A. Pisa, K. Andersen, P. Courtois, B. Hamelin, V. Carassiti, M. Melchiorri, and S. Squerzanti, "Laue Lens Development for Hard X-Rays," *IEEE Transactions on Nuclear Science* **53**, 253–258 (2006).
3. N. Barrière *et al.*, "Second generation crystals for laue lens applications," in "Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series," , vol. 6266 of *Proc. SPIE* (2006), vol. 6266 of *Proc. SPIE*.
4. J. Knödlseeder *et al.*, "Gri: focusing on the evolving violent universe," *Experimental Astronomy* **23**, 121–138 (2009).
5. J. Rousselle, P. von Ballmoos, N. Barrière, N. V. Abrosimov, P. Bastie, G. Bonnetto, T. Camus, P. Courtois, M. Jentschel, E. Lecomte, E. Rivière, and G. Roudil, "High-Z crystals for gamma-ray optics," in "Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series," , vol. 7437 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference* (2009), vol. 7437 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*.
6. J. P. Roques, S. Schanne, A. von Kienlin, J. Knödlseeder, R. Briet, L. Bouchet, P. Paul, S. Boggs, P. Caraveo, M. Casse, B. Cordier, R. Diehl, P. Durouchoux, and P. Jean, "Spi/integral in-flight performance," *Astronomy & Astrophysics* **411**, 91 (2003).
7. N. Guessoum, R. Ramaty, and R. E. Lingenfelter, "Positron annihilation in the interstellar medium," *The Astrophysical Journal* **378**, 170–180 (1991).
8. P. Courtois *et al.*, "Copper mosaic crystals for laue lens, experimental astronomy," *Experimental Astronomy* **20**, 195–200 (2005).
9. R. P. Lin, B. R. Dennis, G. J. Hurford, D. M. Smith, A. Zehnder, P. R. Harvey, D. W. Curtis, D. Pankow, P. Turin, M. Bester, A. Csillaghy, M. Lewis, N. Madden, H. F. van Beek, M. Appleby, T. Raudorf, J. McTier-nan, R. Ramaty, E. Schmahl, R. Schwartz, S. Krucker, R. Abiad, T. Quinn, P. Berg, M. Hashii, R. Sterling, R. Jackson, R. Pratt, R. D. Campbell, D. Malone, D. Landis, C. P. Barrington-Leigh, S. Slassi-Sennou, C. Cork, D. Clark, D. Amato, L. Orwig, R. Boyle, I. S. Banks, K. Shirey, A. K. Tolbert, D. Zarro, F. Snow, K. Thomsen, R. Henneck, A. McHedlishvili, P. Ming, M. Fivian, J. Jordan, R. Wanner, J. Crubb, J. Preble, M. Matranga, A. Benz, H. Hudson, R. C. Canfield, G. D. Holman, C. Crannell, T. Kosugi, A. G. Emslie, N. Vilmer, J. C. Brown, C. Johns-Krull, M. Aschwanden, T. Metcalf, and A. Conway, "The Reuven Ramaty High-Energy Solar Spectroscopic Imager (RHESSI)," *Solar Physics* **210**, 3–32 (2002).
10. D. Attié, B. Cordier, M. Gros, P. Laurent, S. Schanne, G. Tauzin, P. von Ballmoos, L. Bouchet, P. Jean, J. Knödlseeder, P. Mandrou, P. Paul, J. Roques, G. Skinner, G. Vedrenne, R. Georgii, A. von Kienlin, G. Lichti, V. Schönfelder, A. Strong, C. Wunderer, C. Shrader, S. Stürner, B. Teegarden, G. Weidenspointner, J. Kiener, M. Porquet, V. Tatischeff, S. Crespín, S. Joly, Y. André, F. Sanchez, and P. Leleux, "INTEGRAL/SPI ground calibration," *Astron. Astrophys.* **411**, L71–L79 (2003).
11. R. J. Murphy, G. H. Share, X. Hua, R. P. Lin, D. M. Smith, and R. A. Schwartz, "Physical Implications of RHESSI Neutron-Capture Line Measurements," *The Astrophysical Journal* **595**, L93–L96 (2003).

# Conclusions et perspectives

L'astrophysique  $\gamma$  nucléaire, située à l'extrémité du spectre électromagnétique, est un domaine très riche scientifiquement. Il contient l'information capable, entre autres, de révéler la nucléosynthèse des éléments lourds au sein des supernovae ou l'origine de l'antimatière dans la galaxie. Ce domaine est longtemps resté inaccessible, car impossible à observer depuis le sol par l'absorption de l'atmosphère. L'astrophysique nucléaire ne s'est développée que depuis l'avènement de l'aire spatiale, mais est restée handicapée par le rayonnement cosmique, qui noie le faible signal des sources sous un intense bruit de fond. De plus, l'énergie des photons  $\gamma$  rend inefficaces les techniques classiques de focalisation, rendant plus complexe le développement des instruments d'observation. Malgré ces difficultés, dans les années 90 et 2000, des observatoires comme CGRO et INTEGRAL ont réussi à révolutionner l'astrophysique nucléaire, grâce à l'utilisation de détecteurs Compton et de masques codés. Toutefois, ces techniques semblent aujourd'hui avoir atteint leurs limites, où les instruments plus grands ne sont plus forcément plus performants.

Les sensibilités, nécessaires à la compréhension des phénomènes les plus violents de l'univers, ne pourront être atteintes que par de nouvelles technologies, capables d'augmenter le signal collecté en diminuant le bruit de fond. La lentille de Laue est une des voies explorées pour améliorer d'un facteur 10 ou 100 la sensibilité des instruments existants. Elle est capable de concentrer les rayonnements  $\gamma$  et ainsi de découpler les surfaces de collection et de détection.

La lentille de Laue est développée au CERN depuis maintenant de nombreuses années, ce qui a permis, entre autres, de démontrer la faisabilité du concept grâce à la mission ballon CLAIRE. Cette thèse s'inscrit donc logiquement dans la continuité de ce développement, en couvrant de larges domaines, de la conception d'un prototype à la simulation des capacités d'imagerie. Les diverses études avaient pour objectif commun de rendre la lentille de Laue technologiquement viable pour être utilisée sur un observatoire spatialisé. Les principaux résultats, classés par étude, sont présentés dans les paragraphes suivants.

**L'étude théorique comparative des matériaux diffractant** à permis de mettre en avant certains cristaux, en théorie plus performants à qualité cristalline égale. Certains de ces nouveaux cristaux n'avaient encore jamais été envisagées pour une utilisation sur une lentille de Laue. Parmi les meilleurs candidats, on trouve le groupe de l'or, iridium, platine, adaptés aux plus hautes énergies ( $E > 800$  keV), puis le groupe de l'argent, palladium, rhodium pour les énergies intermédiaires (autour de 500 keV). Enfin, pour les plus basses énergies ( $E < 300$  keV), seul le vanadium semble capable d'atteindre des performances comparables au SiGe courbes. Les cristaux de germanium courbe semblent également très prometteurs pour des énergies comprises entre 500 et 800 keV. De manière générale, aucun cristal n'est capable de fournir des performances maximales sur l'ensemble du spectre utilisables par une lentille de Laue. Ainsi, le choix final du matériau diffractant ne pourra se faire qu'après avoir défini les objectifs scientifiques précis et les bandes passantes correspondantes.

---

**Les mesures sur faisceau X-gamma** ont tout d'abord permis d'étudier nos capacités à produire le grand nombre de cristaux nécessaires à la conception d'une lentille de Laue. Cette étude financée par l'ESA, a mis en évidence de très nettes améliorations de la qualité des cristaux de cuivre, dont la mosaïcité semble enfin maîtrisée. Les cristaux de SiGe courbes pour leur part, semblent prometteurs même s'ils n'atteignent pas encore les performances théoriques modélisées.

Les instruments de mesures, mis à notre disposition à l'ESRF et à l'ILL, sont maintenant en place et maîtrisés. La ligne de faisceau DIGRA qui nous est dédiée à l'ILL, pourra dorénavant être utilisée pour pouvoir rapidement caractériser de nouveaux cristaux. Les mesures effectuées durant ma thèse ont permis, entre autres, de tester quelques échantillons (Ag, Rh, Ir, Pt, Au, Pb, AsGa) parmi les nouveaux cristaux modélisés précédemment. Plusieurs cristaux d'or, d'argent, de rhodium et de plomb ont ainsi montré d'excellentes performances, compatibles avec une utilisation sur une lentille de Laue. De nouvelles mesures devront être menées afin de connaître la reproductibilité de fabrication des cristaux déjà caractérisés, et pour tester les autres candidats prometteurs, tel que le vanadium et le germanium courbe.

**Le prototype de segment de lentille,** développé en collaboration avec le CNES et Thales Alenia Space, à démontré avec succès qu'il était possible de fixer les cristaux sur la lentille, sans abîmer leur maille cristalline. Il a également passé avec succès les tests de vibrations et cyclage thermique, le rendant compatible avec les normes spatiales. Malgré la complexité de la technique de montage et les nombreuses difficultés de mesures, nous avons prouvé qu'il était techniquement possible d'aligner les cristaux avec une précision moyenne de 9 et 38 arcsec, respectivement pour les cristaux de SiGe courbes et de cuivre mosaïques. Néanmoins, la technique de montage, dite "hors faisceau", ne semble pas adaptée à la réalisation d'une lentille complète, car elle nécessite un trop grand nombre de mesures sur les lignes X- $\gamma$ . L'étude d'une technique de montage, plus rapide, directement dans le faisceau X ne fait que commencer, elle devra encore être développée pour être capable de réaliser une lentille de plusieurs milliers de cristaux.

Après 15 ans de développement au CESR, la lentille de Laue est aujourd'hui arrivée au terme d'une phase d'optimisation et de validation des briques technologiques, nécessaires à sa spatialisation. Les derniers développements de la lentille, décrits dans cette thèse, ont ainsi contribué à rendre la proposition de mission DUAL techniquement crédible auprès des agences spatiales. Cette mission, qui a été soumise au Cosmic Vision de l'ESA en décembre 2010, prévoit d'associer une lentille de Laue et un détecteur Compton, reliés par un mât déployable de 30 mètres.

- Abrosimov N, Ludge A, Riemann H, Kurlov V, Borissova D, Klemm V, Halloin H, Vonballmoos P, Bastie P, Hamelin B (2005) Growth and properties of mosaic single crystals for  $\gamma$ -ray lens application. *Journal of Crystal Growth* 275 :495–+, DOI 10.1016/j.jcrysgro.2004.11.110
- Abrosimov NV (2005) Mosaic and gradient size single crystals for gamma ray laue lenses. *Experimental Astronomy* 20 :185–194
- Authier A (2001) *Dynamical Theory of X-ray Diffraction*. Oxford University Press
- Authier A, Balibar F (1970) Création de nouveaux champs d'ondes généralisés dus à la présence d'un objet diffractant à l'intérieur d'un cristal parfait. II. Cas d'un défaut isolé. *Acta Crystallographica Section A* 26 :647–654, DOI 10.1107/S0567739470001596
- Balibar F, Chukhovskii FN, Malgrange C (1983) Dynamical X-ray propagation : a theoretical approach to the creation of new wave fields. *Acta Crystallographica Section A* 39(3) :387–399, DOI 10.1107/S0108767383000835, URL <http://dx.doi.org/10.1107/S0108767383000835>
- Barrière N, Guidi V, Bellucci V, Camattari R, Buslaps T, Rousselle J, Roudil G, Arnaud FX, Bastie P, Natalucci L (2010) High diffraction efficiency at hard X-ray energy in a silicon crystal bent by indentation. *Journal of Applied Crystallography* 43(6) :1519–1521, DOI 10.1107/S0021889810038343, URL <http://dx.doi.org/10.1107/S0021889810038343>
- Bellucci S, Bini S, Biryukov VM, Chesnokov YA, Dabagov S, Giannini G, Guidi V, Ivanov YM, Kotov VI, Maishev VA, Malagù C, Martinelli G, Petrunin AA, Skorobogatov VV, Stefancich M, Vincenzi D (2003) Experimental Study for the Feasibility of a Crystalline Undulator. *Physical Review Letters* 90(3) :034,801–+, DOI 10.1103/PhysRevLett.90.034801, arXiv :physics/0208028
- Boehm C, Hooper D, Silk J, Casse M, Paul J (2004) MeV Dark Matter : Has It Been Detected? *Physical Review Letters* 92(10) :101,301–+, DOI 10.1103/PhysRevLett.92.101301, arXiv :astro-ph/0309686
- Bravais A (1866) *Etudes crystallographiques*. Gauthier-Villars
- Burkhanov GS, Kirillova VM, Sdobyrev VV, Dementiev VA (2008) Growth of pure tungsten single crystal using tungsten powders prepared from waste products. *Metal*
- Cameron AGW (1957) *Nuclear Reactions in Stars and Nucleogenesis*. Publication of the Astronomical Society of the Pacific 69 :201–+, DOI 10.1086/127051
- Chupp EL, Forrest DJ, Higbie PR, Suri AN, Tsai C, Dunphy PP (1973) Solar Gamma Ray Lines observed during the Solar Activity of August 2 to August 11, 1972. *Nature* 241 :333–335, DOI 10.1038/241333a0

- 
- Coburn W, Kretschmar P, Kreykenbohm I, McBride VA, Rothschild RE, Staubert R, Wilms J (2006) Cyclotron features in X-ray spectra of accreting pulsars. *Advances in Space Research* 38 :2747–2751, DOI 10.1016/j.asr.2006.02.073
- Cottle P (2010) Nuclear physics : Doubly magic tin. *Nature* 465 :430–431, DOI 10.1038/465430a
- Darwin CG (1914) *Phil Mag* 27 :315–657
- Darwin CG (1922) *Phil Mag* 43 :800
- Ewald PP (1917) Zur Begründung der Kristalloptik. *Annalen der Physik* 359 :519–556, DOI 10.1002/andp.19173592305
- Filippenko AV, Richmond MW, Branch D, Gaskell M, Herbst W, Ford CH, Treffers RR, Matheson T, Ho LC, Dey A, Sargent WLW, Small TA, van Breugel WJM (1992) The subluminous, spectroscopically peculiar type IA supernova 1991bg in the elliptical galaxy NGC 4374. *Astrophysical Journal* 104 :1543–1556, DOI 10.1086/116339
- Frontera F, Von Ballmoos P (2010) Laue gamma-ray lenses for space astrophysics :status and prospects. *ArXiv e-prints* 1007.4308
- Goldwurm A, Ballet J, Cordier B, Paul J, Bouchet L, Roques JP, Barret D, Mandrou P, Sunyaev R, Churazov E, Gilfanov M, Dyachkov A, Khavenson N, Kovtunenkov V, Kremnev R, Sukhanov K (1992) Sigma/GRANAT soft gamma-ray observations of the X-ray nova in Musca - Discovery of positron annihilation emission line. *Astrophysical Journal, Letters* 389 :L79–L82, DOI 10.1086/186353
- Grebenev S, Sunyaev R, Pavlinsky M, Churazov E, Gilfanov M, Dyachkov A, Khavenson N, Sukhanov K, Laurent P, Ballet J, Claret A, Cordier B, Jourdain E, Niel M, Pelaez F, Schmitz-Fraysse MC (1993) Observations of black hole candidates with GRANAT. *Astronomy and Astrophysics, Supplement* 97 :281–287
- Guinier A (1956) *Théorie et Technique de la Radiocristallographie*
- Halluin H, von Ballmoos P, Evrard J, Skinner GK, Hernanz M, Abrosimov NV, Bastie P, Hamelin B, Lonjou V, Alvarez JM, Laurens A, Jean P, Knödleseder J, Smither RK, Vedrenne G (2004) CLAIRE gamma-ray lens : flight and long-distance test results. In : O Citterio & S L O'Dell (ed) *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference, vol 5168, pp 471–481, DOI 10.1117/12.508307
- Harrison FA, Christensen FE, Craig W, Hailey C, Baumgartner W, Chen CMH, Chonko J, Cook WR, Koglin J, Madsen K, Pivavoroff M, Boggs S, Smith D (2005) Development of the HEFT and NuSTAR focusing telescopes. *Experimental Astronomy* 20 :131–137, DOI 10.1007/s10686-006-9072-z
- Haüy RJ (1784) *Essai d'une théorie sur la structure des cristaux*. Chez Gogué

- Hooper D, Goodenough L (2010) Dark Matter Annihilation in The Galactic Center As Seen by the Fermi Gamma Ray Space Telescope. ArXiv e-prints 1010.2752
- Hurford GJ, Schmahl EJ, Schwartz RA, Conway AJ, Aschwanden MJ, Csillaghy A, Dennis BR, Johns-Krull C, Krucker S, Lin RP, McTiernan J, Metcalf TR, Sato J, Smith DM (2002) The RHESSI Imaging Concept. *Solar Physics* 210 :61–86, DOI 10.1023/A :1022436213688
- Indriolo N, Fields BD, McCall BJ (2009) The Implications of a High Cosmic-Ray Ionization Rate in Diffuse Interstellar Clouds. *Astrophysical Journal* 694 :257–267, DOI 10.1088/0004-637X/694/1/257, 0901.1143
- Jean P, Knödlseeder J, Gillard W, Guessoum N, Ferrière K, Marcowith A, Lonjou V, Roques JP (2006) Spectral analysis of the Galactic e+e- annihilation emission. *Astronomy and Astrophysics* 445 :579–589, DOI 10.1051/0004-6361 :20053765, arXiv :astro-ph/0509298
- Jelley JV (1981) The atmospheric Cherenkov technique in gamma-ray astronomy - The early days. *Royal Society of London Philosophical Transactions Series A* 301 :611–614, DOI 10.1098/rsta.1981.0139
- Johnson WN III, Haymes RC (1973) Detection of a Gamma-Ray Spectral Line from the Galactic-Center Region. *Astrophysical Journal* 184 :103–126, DOI 10.1086/152309
- Johnson WN III, Harnden FR Jr, Haymes RC (1972) The Spectrum of Low-Energy Gamma Radiation from the Galactic-Center Region. *Astrophysical Journal, Letters* 172 :L1+, DOI 10.1086/180878
- Kalemci E, Reynolds SP, Boggs SE, Lund N, Chenevez J, Renaud M, Rho J (2006) X-Ray Observations of SN 1006 with INTEGRAL. *Astrophysical Journal* 644 :274–278, DOI 10.1086/503377, arXiv :astro-ph/0602335
- Kato N (1964) Pendellösung Fringes in Distorted Crystals III. Application to homogeneously bent crystals. *Journal of the Physical Society of Japan* 19 :971–+
- Keitel, et al (1999) Diffraction of 100 to 200 kev x-rays from an si1-xge1-x gradient crystal : comparison with results from dynamical theory. *Acta Crystallographica A* 55 :185–194
- Kessler Jr EG (2001) The gams4 flat crystal facility. *NIM A* 457 :187–202
- Klebesadel RW, Strong IB, Olson RA (1973) Observations of Gamma-Ray Bursts of Cosmic Origin. *Astrophysical Journal, Letters* 182 :L85+, DOI 10.1086/181225
- Knödlseeder J (1997) The Origin of  $^{26}\text{Al}$  in the Galaxy. PhD thesis, , Univ. Paul Sabatier, Toulouse, France, <http://www.cesr.fr/~jorgen/publications/thesis.ps.gz> (1997)

- 
- Knödlseider J, Jean P, Lonjou V, Weidenspointner G, Guessoum N, Gillard W, Skinner G, von Ballmoos P, Vedrenne G, Roques J, Schanne S, Teegarden B, Schönfelder V, Winkler C (2005) The all-sky distribution of 511 keV electron-positron annihilation emission. *Astronomy & Astrophysics* 441 :513–532, DOI 10.1051/0004-6361 :20042063, arXiv :astro-ph/0506026
- Knödlseider J, von Ballmoos P, Frontera F, Bazzano A, Christensen F, Hernanz M, Wunderer C (2009) GRI : focusing on the evolving violent universe. *Experimental Astronomy* 23 :121–138, DOI 10.1007/s10686-008-9119-4, 0707.4627
- Kraushaar WL, Clark GW, Garmire GP, Borken R, Higbie P, Leong V, Thorsos T (1972) High-Energy Cosmic Gamma-Ray Observations from the OSO-3 Satellite. *Astrophysical Journal* 177 :341, DOI 10.1086/151713
- Laue M (1912) Zur Theorie des Versuches von Trouton und Noble. *Annalen der Physik* 343 :370–384, DOI 10.1002/andp.19123430705
- Lei F, Dean AJ, Hills GL (1997) Compton Polarimetry in Gamma-Ray Astronomy. *Space Science Reviews* 82 :309–388, DOI 10.1023/A :1005027107614
- Leventhal M, MacCallum CJ, Stang PD (1978) Detection of 511 keV positron annihilation radiation from the galactic center direction. *Astrophysical Journal, Letters* 225 :L11–L14, DOI 10.1086/182782
- Lin RP, Dennis BR, Hurford GJ, Smith DM, Zehnder A, Harvey PR, Curtis DW, Pankow D, Turin P, Bester M, Csillaghy A, Lewis M, Madden N, van Beek HF, Appleby M, Raudorf T, McTiernan J, Ramaty R, Schmahl E, Schwartz R, Kruker S, Abiad R, Quinn T, Berg P, Hashii M, Sterling R, Jackson R, Pratt R, Campbell RD, Malone D, Landis D, Barrington-Leigh CP, Slassi-Sennou S, Cork C, Clark D, Amato D, Orwig L, Boyle R, Banks IS, Shirey K, Tolbert AK, Zarro D, Snow F, Thomsen K, Henneck R, McHedlishvili A, Ming P, Fivian M, Jordan J, Wanner R, Crubb J, Preble J, Matranga M, Benz A, Hudson H, Canfield RC, Holman GD, Crannell C, Kosugi T, Emslie AG, Vilmer N, Brown JC, Johns-Krull C, Aschwanden M, Metcalf T, Conway A (2002) The Reuven Ramaty High-Energy Solar Spectroscopic Imager (RHESSI). *Solar Physics* 210 :3–32, DOI 10.1023/A :1022428818870
- Lindquist TR (1971) Observations of Extraterrestrial X-Rays by a Balloon - Focusing X-Ray Telescope . PhD thesis, UNIVERSITY OF MINNESOTA.
- Lindquist TR, Webber WR (1968) A focusing X-ray telescope for use in the study of extraterrestrial X-ray sources in the energy range 20-140 keV. *Canadian Journal of Physics* Vol 46, Supplement, p1103 46 :1103–+
- Mahoney WA, Ling JC, Wheaton WA, Jacobson AS (1984) HEAO 3 discovery of Al-26 in the interstellar medium. *Astrophysical Journal* 286 :578–585, DOI 10.1086/162632
- Malgrange C (2002) X-ray propagation in distorted crystals : From dynamical to kinematical theory. *Crystal Research and Technology* 37 :654–662

- Matz SM, Share GH, Leising MD, Chupp EL, Vestrand WT (1988) Gamma-ray line emission from SN1987A. *Nature* 331 :416–418, DOI 10.1038/331416a0
- Meegan CA, Fishman GJ, Wilson RB, Horack JM, Brock MN, Paciesas WS, Pendleton GN, Kouveliotou C (1992) Spatial distribution of gamma-ray bursts observed by BATSE. *Nature* 355 :143–145, DOI 10.1038/355143a0
- Morris DJ, Bennett K, Bloemen H, Hermsen W, Lichti GG, McConnell ML, Ryan JM, Schönfelder V (1995) Evidence for  $^{56}\text{Co}$  Line Emission from the Type Ia Supernova 1991 T Using COMPTEL. In : H Böhringer, G E Morfill, & J E Trümper (ed) Seventeenth Texas Symposium on Relativistic Astrophysics and Cosmology, *Annals of the New York Academy of Sciences*, vol 759, pp 397–+, DOI 10.1111/j.1749-6632.1995.tb17571.x
- Murphy RJ, Kozlovsky B, Share GH, Hua X, Lingenfelter RE (2007) Using Gamma-Ray and Neutron Emission to Determine Solar Flare Accelerated Particle Spectra and Composition and the Conditions within the Flare Magnetic Loop. *Astronomy and Astrophysics, Supplement* 168 :167–194, DOI 10.1086/509637
- Mushotzky RF, Serlemitsos PJ, Boldt EA, Holt SS, Smith BW (1978) OSO 8 X-ray spectra of clusters of galaxies. I - Observations of twenty clusters : Physical correlations. *Astrophysical Journal* 225 :21–39, DOI 10.1086/156465
- Paul J, Ballet J, Cantin M, Cordier B, Goldwurm A, Lambert A, Mandrou P, Chabaud JP, Ehanno M, Lande J (1991) Sigma - The hard X-ray and soft gamma-ray telescope on board the GRANAT space observatory. *Advances in Space Research* 11 :289–302, DOI 10.1016/0273-1177(91)90181-I
- Penning P, Polder D (1961) vol 16. Philips Research Report
- Perlow GJ, Kissinger CW (1951) A search for primary cosmic gamma-radiation. ii. low energy radiation above and within the atmosphere. *Physical Review* 84(3) :572–580, DOI 10.1103/PhysRev.84.572
- Peterson L, Winckler JR (1958) Short gamma-Ray Burst from a Solar Flare. *Physical Review Letters* 1 :205–206, DOI 10.1103/PhysRevLett.1.205
- Phillips MM, Wells LA, Suntzeff NB, Hamuy M, Leibundgut B, Kirshner RP, Foltz CB (1992) SN 1991T - Further evidence of the heterogeneous nature of type IA supernovae. *Astrophysical Journal* 103 :1632–1637, DOI 10.1086/116177
- Pinto PA, Eastman RG, Rogers T (2001) A Test for the Nature of the Type IA Supernova Explosion Mechanism. *Astrophysical Journal* 551 :231–243, DOI 10.1086/320059, arXiv :astro-ph/0008330
- Piran T (2004) The physics of gamma-ray bursts. *Reviews of Modern Physics* 76 :1143–1210, DOI 10.1103/RevModPhys.76.1143, arXiv :astro-ph/0405503
- Plüschke S, Diehl R, Schönfelder V, Bloemen H, Hermsen W, Bennett K, Winkler C, McConnell M, Ryan J, Oberlack U, Knödseder J (2001) The COMPTEL



---

1.809 MeV survey. In : A Gimenez, V Reglero, & C Winkler (ed) Exploring the Gamma-Ray Universe, ESA Special Publication, vol 459, pp 55–58, arXiv :astro-ph/0104047

Prince E (2004) International Tables of Crystallography

Prince TA, Ling JC, Mahoney WA, Riegler GR, Jacobson AS (1982) A high-resolution measurement of the 2.223 MeV neutron capture line in a solar flare. *Astrophysical Journal, Letters* 255 :L81–L84, DOI 10.1086/183773

Purcell WR, Cheng L, Dixon DD, Kinzer RL, Kurfess JD, Leventhal M, Saunders MA, Skibo JG, Smith DM, Tueller J (1997) OSSE Mapping of Galactic 511 keV Positron Annihilation Line Emission. *Astrophysical Journal* 491 :725–+, DOI 10.1086/304994

Ramaty R, Mandzhavidze N (2000) Gamma-rays from Solar Flares. In : P C H Martens, S Tsuruta, & M A Weber (ed) Highly Energetic Physical Processes and Mechanisms for Emission from Astrophysical Plasmas, IAU Symposium, vol 195, pp 123–+

Roques JP, Schanne S, von Kienlin A, Knodlseder J, Briet R, Bouchet L, Paul P, Boggs S, Caraveo P, Casse M, Cordier B, Diehl R, Durouchoux P, Jean P (2003) *Spi/integral* in-flight performance. *Astronomy & Astrophysics* 411 :91

Rousselle J, von Ballmoos P, Barrière N, Abrosimov NV, Bastie P, Bonnetto G, Camus T, Courtois P, Jentschel M, Lecomte E, Rivière E, Roudil G (2009) High-Z crystals for gamma-ray optics. In : Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series, vol 7437, DOI 10.1117/12.825245

Skinner GK, Ponman TJ, Hammersley AP, Eyles CJ (1987) Techniques for the analysis of data from coded-mask X-ray telescopes. *Astrophysics and Space Science* 136 :337–349, DOI 10.1007/BF00642125

Smither, et al (2005) High diffraction efficiency, broadband, diffraction crystals for use in crystal diffraction lenses. *Experimental Astronomy* 20 :201–210

Tatischeff V, Kiener J (2004)  $\gamma$ -ray lines from cosmic-ray interactions with interstellar dust grains. *New Astronomy Reviews* 48 :99–103, DOI 10.1016/j.newar.2003.11.013, arXiv :astro-ph/0310827

Tatischeff V, Kozlovsky B, Kiener J, Murphy RJ (2006) Delayed X- and Gamma-Ray Line Emission from Solar Flare Radioactivity. *Astronomy and Astrophysics, Supplement* 165 :606–617, DOI 10.1086/505112, arXiv :astro-ph/0604325

Tavecchio F, Maraschi L, Sambruna RM, Urry CM (2000) The X-Ray Jet of PKS 0637-752 : Inverse Compton Radiation from the Cosmic Microwave Background ? *Astrophysical Journal, Letters* 544 :L23–L26, DOI 10.1086/317292, arXiv :astro-ph/0007441

- Trumper J, Pietsch W, Reppin C, Voges W, Staubert R, Kendziorra E (1978) Evidence for strong cyclotron line emission in the hard X-ray spectrum of Hercules X-1. *Astrophysical Journal, Letters* 219 :L105–L110, DOI 10.1086/182617
- Ubertini P, Lebrun F, Di Cocco G, Bazzano A, Bird AJ, Broenstad K, Goldwurm A, La Rosa G, Labanti C, Laurent P, Mirabel IF, Quadrini EM, Ramsey B, Reglero V, Sabau L, Sacco B, Staubert R, Vigroux L, Weisskopf MC, Zdziarski AA (2003) IBIS : The Imager on-board INTEGRAL. *Astronomy & Astrophysics* 411 :L131–L139, DOI 10.1051/0004-6361 :20031224
- Villard P (1900) Sur la reflexion et la refraction des rayons cathodiques et des rayons deviables du radium, vol 130. *Comptes Rendus de l'Academie des Sciences*
- von Ballmoos P, Halloin H, Evrard J, Skinner G, Abrosimov N, Alvarez J, Bastie P, Hamelin B, Hernanz M, Jean P, Knödlseeder J, Lonjou V, Smither B, Vedrenne G (2004a) CLAIRE's first light. *New Astronomy Reviews* 48 :243–249, DOI 10.1016/j.newar.2003.11.032
- von Ballmoos P, Halloin H, Skinner GK, Smither RK, Paul J, Abrosimov NV, Alvarez JM, Astier P, Bastie P, Barret D, Bazzano A, Boutonnet A, Brousse P, Cordier B, Courvoisier T, Di Cocco G, Giuliani A, Hamelin B, Hernanz M, Jean P, Isern J, Knödlseeder J, Laurent P, Lebrun F, Marcowith A, Martinot V, Natalucci L, Olive J, Pain R, Sadat R, Sainct H, Ubertini P, Vedrenne G (2004b) MAX : a gamma-ray lens for nuclear astrophysics. In : O Citterio & S L O'Dell (ed) *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference, vol 5168, pp 482–491, DOI 10.1117/12.509672
- von Ballmoos P, Halloin H, Skinner GK, Smither RK, Paul J, Abrosimov NV, Alvarez JM, Astier P, Bastie P, Barret D, Bazzano A, Boutonnet A, Brousse P, Cordier B, Courvoisier T, Di Cocco G, Giuliani A, Hamelin B, Hernanz M, Jean P, Isern J, Knödlseeder J, Laurent P, Lebrun F, Marcowith A, Martinot V, Natalucci L, Olive J, Pain R, Sadat R, Sainct H, Ubertini P, Vedrenne G (2004c) MAX : a gamma-ray lens for nuclear astrophysics. In : O Citterio & S L O'Dell (ed) *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series, vol 5168, pp 482–491, DOI 10.1117/12.509672
- von Ballmoos P, Halloin H, Evrard J, Skinner G, Abrosimov N, Alvarez J, Bastie P, Hamelin B, Hernanz M, Jean P, Knödlseeder J, Smither B (2005) CLAIRE : First light for a gamma-ray lens. *Experimental Astronomy* 20 :253–267, DOI 10.1007/s10686-006-9071-0
- Vrána M, Mikula P, Lebech B (2004) Direct comparison of plastically deformed Ge mosaic crystal and bent perfect Si crystal for neutron monochromatization. *Physica B Condensed Matter* 350, DOI 10.1016/j.physb.2004.03.180
- Weidenspointner G, Skinner G, Jean P, Knödlseeder J, von Ballmoos P, Bignami G, Diehl R, Strong AW, Cordier B, Schanne S, Winkler C (2008) An asymmetric

---

distribution of positrons in the Galactic disk revealed by  $\gamma$ -rays. *Nature* 451 :159–162, DOI 10.1038/nature06490

Zachariasen WH (1945) *Theory of X-ray diffraction in crystals*. Dover Publication

Zoglauer A, Kanbach G (2003) Doppler broadening as a lower limit to the angular resolution of next-generation Compton telescopes. In : J E Truemper & H D Tannanbaum (ed) *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference, vol 4851, pp 1302–1309, DOI 10.1117/12.461177